

HELVETICA PHYSICA ACTA

SOCIETATIS PHYSICAE HELVETICAE
COMMENTARIA PUBLICA

VOLUMEN XX

BASILEAE • IN AEDIBUS BIRKHAEUSER
MCMXLVII

Schweizerische Physikalische Gesellschaft
Copyright 1947 by: Société Suisse de Physique
Società Fisica Svizzera

Druck von Emil Birkhäuser & Cie., A. G., Basel

Eigenschaften von ein- und mehrfachen zylindrischen akustischen Resonatoren

von Paul Wirz.

(10. IX. 1946.)

I. Problemstellung.

Auffallenderweise ist bis vor kurzem die Aufnahme von Resonanzkurven akustischer Resonatoren gänzlich vernachlässigt worden. ZICKENDRAHT fand 1941 eine Feinstruktur, die er aus den Strömungsvorgängen an der Mündung des erregten Resonators zu deuten versuchte. Das Problem bedurfte aber noch der Klärung und bildet daher das Thema der vorliegenden Arbeit. Diese befasst sich deshalb zunächst mit der Aufnahme von Resonanzkurven, speziell solcher von Zylinderresonatoren, und mit deren Auswertung hinsichtlich der Dämpfung.

Im fernern interessiert auch die Möglichkeit einer exakten Berechnung der Resonanzfrequenzen. Ein weiterer Abschnitt ist daher der sog. Mündungskorrektur gewidmet. Es wird darin eine Verfeinerung der bisher verwendeten Korrekturen angegeben werden.

Ein letzter, kurzer Abschnitt dieser Arbeit beschreibt eine Methode zur quantitativen Untersuchung der Luftströmungen in der Umgebung der Resonatoröffnungen. Die Gewinnung derartiger Strömungsbilder ist insofern von Interesse, als verschiedene bisher nicht restlos geklärte Erscheinungen an akustischen Resonatoren möglicherweise auf Vorgänge, die sich nahe der Mündung abspielen, zurückgeführt werden können.

II. Schallerzeugung und Frequenzmessung.

Für alle im Folgenden zu beschreibenden Arbeiten war es notwendig, eine Anordnung zur Verfügung zu haben, welche die Erregung der Resonatoren mit jeder gewünschten Frequenz in hinreichender Intensität erlaubte. Mit gutem Erfolg wird dazu der Schwebungstongenerator mit Lautsprecher benützt. Die von verschiedenen Autoren (ANDRADE¹), HARDUNG²), LEHMANN³), BUKOFZER⁴), ZICKENDRAHT⁵)) beschriebenen Arbeitsverfahren mit solchen Anordnungen besitzen jedoch den gemeinsamen Nachteil, dass das Ablesen der Frequenz an einer Skala, direkt oder unter

Benützung einer Eichkurve, erfolgte. Die erreichbare Genauigkeit war daher schon durch die Ablesefehler begrenzt. Weiterhin konnte der Generator nur von Zeit zu Zeit und nur auf bestimmten Frequenzen (!) mit Hilfe von Stimmgabeln oder anderen Eichfrequenzen auf Konstanz geprüft werden.

Für die vorliegenden Bedürfnisse wurde eine Anordnung zusammengestellt, welche die Bestimmung der vom Generator erzeugten Frequenzen ohne Skala und Eichkurven durch Vergleich mit der Netzfrequenz gestattete. Eine Anfrage beim Baselschischen Elektrizitätswerk hatte nämlich ergeben, dass die maximale Abweichung der Netzfrequenz vom Sollwert 1‰ betrage und in den frühen Nachmittagsstunden am geringsten sei.

Der Frequenzvergleich erfolgte durch Herstellung Lissajouscher Figuren mittels eines Kathodenstrahloszillographen. Stehende Bilder, die noch übersichtlich sind, zeigen sich erstens bei allen Tonfrequenzen, die ganzzahlige Vielfache von 50 Hz sind, sodann bei denjenigen Frequenzen, die um $50 \cdot p/q$ von den erstgenannten abweichen, wobei p und q voneinander unabhängige kleine ganze Zahlen (praktisch 1 bis 6) bedeuten. Dazwischenliegende Frequenzen werden durch Bestimmen der Laufgeschwindigkeit der Bilder mit Hilfe einer Stoppuhr gemessen. In gewissen Lagen gestattet die grosse Anzahl der auf dem Schirm erscheinenden Linien diese Messung nicht mehr, so dass die Frequenz geschätzt werden muss. Aus diesem Grunde ist für Frequenzmessungen in diesen Bereichen ein Fehler von maximal 0,25 Hz anzunehmen. Dazu kommt noch die mögliche Abweichung der Netzfrequenz von ihrem Sollwert (50 Hz).

Als Tongenerator diente ein Erzeugnis der Firma Siemens & Halske, an den ein dreistufiger Verstärker derselben Hersteller angeschlossen war. An seinem Ausgang lag, parallel zum Oszillographen, ein permanentdynamischer Lautsprecher (Philips), welcher in der Mitte einer 1 m^2 grossen Schallwand angebracht war, ferner ein Röhrenvoltmeter, dessen Bau und Anwendung noch erläutert werden sollen. Schliesslich wurde zum Zwecke kontinuierlicher Lautstärkeregelung ein Potentiometer zwischen Tongenerator und Verstärker eingeschaltet.

III. Zur „Feinstruktur“ der Resonanzkurven.

Anlass zu den in diesem Abschnitt beschriebenen Arbeiten gab die ZICKENDRAHTSche Publikation über die „Feinstruktur der Resonanzkurven akustischer Resonatoren“⁵⁾. Gemessene Resonanzkurven akustischer Resonatoren sind meines Wissens vor der

erwähnten Publikation nicht veröffentlicht worden; auch ZICKENDRAHT waren im Zeitpunkt seiner Untersuchungen keine derartigen Arbeiten bekannt (dort S. 536). An der genannten Stelle zeigt ZICKENDRAHT, dass die Resonanzkurven der verschiedenen von ihm gemessenen Resonatoren aus mehr oder weniger zahlreichen Extremis verschiedener Intensitäten zusammengesetzt sind. Die Ursachen dieser Feinstruktur vermutet der Autor in den in jeder Resonatormündung auftretenden asymmetrischen Luftströmungen, welche möglicherweise die Entstehung von Kombinationstönen unharmonischer Obertöne der Resonatoren begünstigen.

Eine weitere Arbeit über dasselbe Gebiet wurde von LOEBENSTEIN⁶⁾ verfasst. Darin wurde die Resonanzkurve eines zylindrischen Resonators nicht mittels der schallempfindlichen Flamme, wie bei ZICKENDRAHT, sondern unter Benützung eines Hitzdrahtmikrophons aufgenommen. Auch hier trat eine Feinstruktur auf, welche eine weitgehende Ähnlichkeit mit der von ZICKENDRAHT beschriebenen zeigte.

Um die Ursachen der Feinstruktur klarzulegen, wurde zunächst versucht, die in der erstgenannten Publikation dargestellten Resonanzkurven zu reproduzieren; anschliessend wurden Messungen mit anderen Resonatoren und unter geänderten Bedingungen angestellt.

Es erwies sich bald, dass die beobachtete Feinstruktur nicht eine Eigenschaft der Resonatoren sein konnte, denn

erstens gab ein und derselbe Resonator, bei verschiedenen Aufstellungsbedingungen untersucht, durchaus verschiedene Lagen der Extrema,

zweitens zeigten Resonatoren verschiedener Resonanzfrequenzen, alle unter den gleichen Bedingungen gemessen, volle Übereinstimmung der Stellen ihrer Extrema.

Ein Beispiel für diese letztere Beobachtung, gewonnen an beidseitig offenen zylindrischen Röhren als Resonatoren, zeigt die Fig. 1. Aus ihr geht hervor, dass die Lagen der Extrema vom Resonator unabhängig sind.

Eine Untersuchung mit einem absoluten Schallmesser^{*)} zeigte unmissverständlich, dass die Vielzahl der Extrema von den Eigenschaften des Raumes, in dem die Experimente durchgeführt wurden, herrührte. Das Schallmessmikrophon wurde an die Stelle gebracht, wo sich bei den Messungen die dem Lautsprecher näher gelegene Resonatormündung befunden hatte, der Schalldruck als

*) Noise Meter Type TF 500/A der Marconi-EKCO.

Funktion der Frequenz aufgenommen und zu unterst in Fig. 1 dargestellt. Die Koinzidenz der Resonanzkurven mit der Schalldruckkurve, welche die „Raumresonanzen“ wiedergibt, ist über jeden Zweifel erhaben. Die Schalldruckkurve zeigt zwischen Maximum und Minimum einen Unterschied von 26 Phon bei etwa 79 Phon mittlerer Lautstärke.

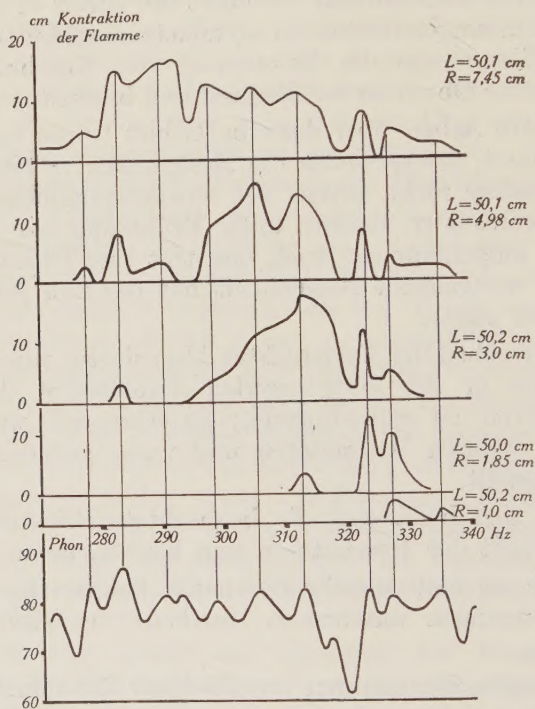


Fig. 1.

Dass der Lautsprecher und die mit ihm verbundenen Apparate nur einen vernachlässigbar kleinen Anteil an dieser Inkonstanz des Schalldruckes haben, wurde experimentell verifiziert. Dazu wurde das Schallmessmikrophon unmittelbar an den Lautsprecher gelegt, alles umgeben von einer mit gut schalldämpfendem Material gefüllten Kiste. Die gewonnene Kurve zeigte im Bereiche zwischen 270 und 350 Hz zwischen Maximum und Minimum einen Unterschied von 1,5 Phon bei 100 Phon mittlerer Lautstärke.

Die genannten „Raumresonanzen“ entstehen, wie bekannt, aus Interferenzen der an den Begrenzungsflächen und an jedem Gegenstand im Raume reflektierten Schallwellen (vgl. FREI⁷), GEMPERLEIN⁸)).

Damit ist die Ursache der wahrgenommenen Feinstruktur aufgedeckt. Die Verhältnisse können qualitativ folgendermassen charakterisiert werden: Die gemessene Resonanzkurve ist eine Superposition der wahren Resonanzkurve des Resonators und der Kurve der Raumresonanzen.

Bevor das im nächsten Kapitel beschriebene Verfahren zur Aufnahme der wahren Resonanzkurve angewendet wurde, sollten Versuche die Frage klären, wie nahe man ihr ohne allzu grossen Aufwand unter Benützung schalldämpfender Mittel im Untersuchungsraum kommen könne (vgl. dazu MEYER, BUCHMANN und СНОЧН⁹⁾). Dazu wurde ein Zelt von 4 m² Grundriss und 2,5 m Höhe gebaut, dessen sämtliche Begrenzungsflächen aus dicken Matten von schalldämpfendem Material bestanden. Ein empirisch gefundener optimaler Ort für die Aufstellung der Resonatoren zeigte eine grösste Differenz der zwischen 270 und 350 Hz auftretenden Schalldrucke von 9,0 Phon bei 84 Phon mittlerer Lautstärke. Diese wesentlich verbesserten Verhältnisse erlauben es, die Resonanzfrequenzen mit guter Annäherung zu bestimmen, denn die Kurven der untersuchten Resonatoren weisen durchwegs nur noch ein Maximum auf. Die Aufnahme einer zuverlässigen Resonanzkurve ist jedoch auch im Zelt nicht möglich.

IV. Quantitative Aufnahme von Resonanzkurven akustischer Resonatoren. Dämpfungsbestimmung.

Methode. Nunmehr soll eine Methode beschrieben werden, welche die quantitative Aufnahme von Resonanzkurven gewisser akustischer Resonatoren auch dann gestattet, wenn ein weitgehend schallgedämpfter Raum nicht zur Verfügung steht. Sie beruht auf drei Voraussetzungen:

Der zu untersuchende Resonator soll nur eine Öffnung besitzen. Es wird daher eine gedackte Pfeife mit kreisförmigem Querschnitt benützt.

An der Stelle der Pfeifenöffnung ist ein über den interessierenden Frequenzbereich konstanter Schalldruck zu erzeugen.

Die Amplitude oder die Intensität der erzwungenen Schwingung ist objektiv zu messen (die schallempfindliche Flamme gestattet eine quantitative Bestimmung der Schallschnelle nur in grober Annäherung).

Das Vorgehen war folgendes: Vor der Aufnahme der Resonanzkurve wurde das Schallmessmikrophon am Ort der Resonator-mündung aufgestellt und im interessierenden Frequenzbereich für

möglichst viele Frequenzen die Spannung bestimmt, die dem Lautsprecher zugeführt werden musste, damit er an der Resonator-mündung einen bestimmten Schalldruck erzeugte. Der Resonator stand bereits bei diesen Vorarbeiten an seinem Platz, war jedoch durch eine Wattefüllung am Mitschwingen gehindert. Die Aufnahme der Resonanzkurven geschah dann, nachdem das Schallmessmikrophon und die Watte aus dem Resonator entfernt worden waren, für jede Frequenz mit der vorausbestimmten Spannung am Lautsprecher.

Geräte. Die Messung der dem Lautsprecher zugeführten Spannung geschah mittels eines Röhrenvoltmeters, welches an Hand der Fig. 2, die nur die wesentlichen Teile darstellt, beschrieben sei.

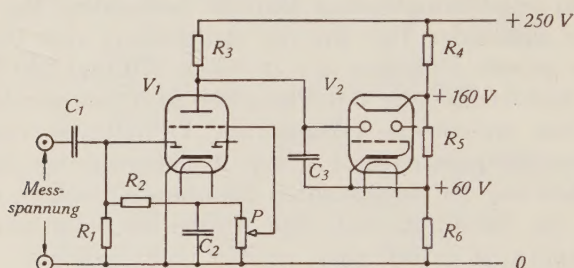


Fig. 2.

Röhrenvoltmeter.

V_1 : 6 Q 7; V_2 : 6 AD 6 G; P : 1,5 M Ω ; R_1 : 2 M Ω ; R_2 : 1 M Ω ; R_3 : 1 M Ω ; R_4 : 16 k Ω ; R_5 : 20 k Ω ; R_6 : 10 k Ω ; C_1 : 10 nF; C_2 : 0,1 μ F; C_3 : 0,1 μ F.

Eine Diodenstrecke der Purotronröhre 6Q7 lässt am Potentiometer P eine dem Scheitelwert der Messspannung proportionale Gleichspannung auftreten. Die an ihm abgegriffene Teilspannung steuert über den Triodenteil der 6Q7-Röhre (Gleichstromverstärker) den einen Schattensektor der Indikatorröhre 6AD6G (Fabrikat Sylvania) in dem Sinne, dass dieser um so kleiner wird, je höher die am Gitter der 6Q7 liegende negative Spannung ist. Durch den Spannungsteiler R_4 , R_5 und R_6 wird *erstens* der Leuchtschirm auf einem positiven Potential gehalten, das von dem des Ablenksteges bei gesperrtem Anodenstrom der 6Q7 übertroffen wird. Damit wird erreicht, dass die Leuchtsektoren sich überschneiden können und dass die Empfindlichkeit $d\Psi/dV_g$ (Ψ = Grösse des Schattensektors, V_g = Gitterspannung) im Moment des Überschneidens gross ist. *Zweitens* erhält die Kathode der Indikatorröhre ein durch die maximal zulässige Leuchtschirmspannung bestimmtes positives Potential. C_3 dient zum Erzielen scharfer Ränder der Leuchtsektoren.

Eine Spannungsmessung geschieht durch Einstellen des Potentiometers auf den Punkt, der die Leuchtsektorränder eben zur Berührung bringt. Die Stellung des Potentiometers ist dann ein Mass für die Grösse der angelegten Spannung, deren Absolutwert zu kennen für den vorliegenden Zweck übrigens gar nicht notwendig ist.

Dieses Gerät bietet neben verschiedenen anderen Vorteilen gegenüber Zeigergeräten die Annehmlichkeit, dass die gewünschte Lautstärke nicht an Hand eines mit Trägheit behafteten Zeigers reguliert wird, sondern dass — nach Einstellung des Potentiometers auf den gewünschten Wert — der Lautstärkereger einfach in diejenige Stellung gebracht werden kann, welche die trägheitslos sich ändernden Leuchtsektoren eben zur Berührung bringt.

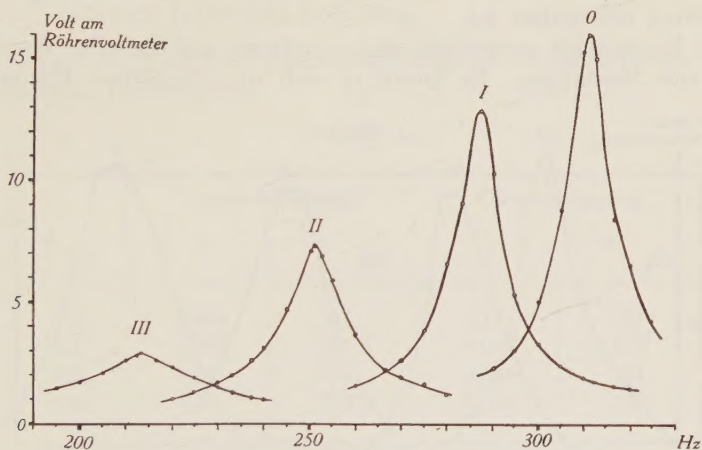


Fig. 3.

Resonanzkurven. Grundschiwingung. Resonator $L = 25,4$ cm $\varnothing = 6,5$ cm.
 0: Unverengte Mündung; I: Blende 4,1 cm \varnothing ; II: Blende 2,6 cm \varnothing ;
 III: Blende 1,65 cm \varnothing .

Die Messung der Intensität der im Resonator erzwungenen Schwingung geschah durch ein Kondensatormikrophon, das sich zufolge seiner Bauart sehr gut zur Verwendung als Boden der gedackten Pfeife eignete. Als solche wurde ein Haefelit-Rohr von 25,4 cm Länge und 6,5 cm Innendurchmesser gewählt. Die vom Kondensatormikrophon abgegebene Spannung wurde durch einen zweistufigen Verstärker 534fach verstärkt, so dass zur Messung ein vorhandenes Röhrenvoltmeter (Type TF428 der Marconi-EKCO, im Prinzip ein Diodengleichrichter mit nachfolgender Gleichstromverstärkung) benutzt werden konnte. Einer von der Hersteller-

firma des Mikrophons herausgegebenen Eichkurve war zu entnehmen, dass in der verwendeten Schaltung bei einem Schalldruck von $1 \mu\text{B}$, entsprechend einer Lautstärke von 74 Phon, eine Spannung von 2,15 mV am Mikrophon aufträte und damit eine solche von 1,15 V am Röhrenvoltmeter.

Die vom Mikrophon abgegebene Spannung ist dem Schalldruck proportional (SELL¹⁰), LÜBCKE¹¹), so dass, wenn für die Auswertung (Dämpfungsberechnung) die Schallenergie am Resonator als Funktion der Frequenz bekannt sein muss, die Angaben des Röhrenvoltmeters für jede Frequenz zu quadrieren sind.

Resonanzkurven. Die Resonanzkurve der gedackten Pfeife, aufgenommen in der Umgebung ihrer Grundschiwingung, ist in Fig. 3 dargestellt, wo sie aussen rechts als die Kurve mit der grössten Erhebung erkennbar ist.

Die Figur zeigt ausserdem einige weitere, auf dieselbe Weise gewonnene Messungen. Es handelte sich um denselben Resonator,

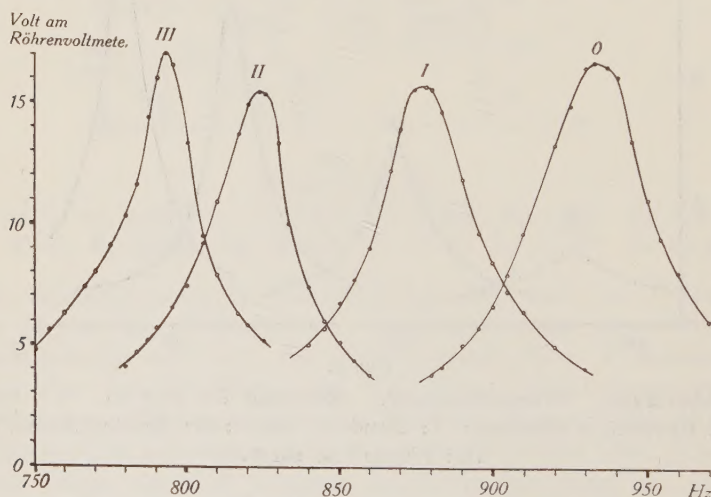


Fig. 4.

Resonanzkurven. Oberschwingung. Vgl. Text von Fig. 3.

dessen Mündung jedoch durch aufgesetzte Blenden aus Messingblech verengt wurde. Die Kurven gehören — von links nach rechts — zu den Mündungsdurchmessern 1,65 cm, 2,6 cm und 4,1 cm.

Die Fig. 4 zeigt die Resonanzkurven derselben Resonatoren in der Umgebung ihrer ersten Oberschwingung. Während diese beim Resonator mit unverengter Öffnung der Bedingung entspricht, dass die *Resonatorlänge* ungefähr gleich *drei Viertelwellenlängen* sei,

nähert sich der Schwingungszustand mit kleiner werdender Öffnung demjenigen einer beidseitig geschlossenen Röhre, wobei an beiden Enden Druckmaxima auftreten und die *halbe Wellenlänge* sich der *Resonatorlänge* nähert.

Auswertung. Dämpfungsberechnung. Die Berechnung der Dämpfungsdekremente aus der Form der Resonanzkurven geschieht nach der Formel¹²⁾

$$\vartheta = \pi \cdot \left(1 - \frac{F^2}{F_R^2}\right) \cdot \sqrt{\frac{I}{I_R - I}}$$

wo ϑ das natürliche logarithmische Dekrement, F_R die Resonanzfrequenz, I_R die Resonanzintensität und I die zur beliebigen Frequenz F gehörige Intensität bedeuten.

Die Tabelle 1 enthält die so berechneten Werte für die logarithmischen Dekremente.

Tabelle 1.

d cm	Grundschwingung		Oberschwingung	
	ϑ	F_R Hz	ϑ	F_R Hz
6,5	0,076	311	0,11	933
4,1	0,082	287,5	0,095	878
2,6	0,13	251	0,085	824
1,65	0,28	213,5	0,056	793

Über die Dämpfung zylindrischer akustischer Resonatoren, deren Mündungen in ausgedehnten Ebenen liegen sollten, ist von LICHTE¹³⁾ eine theoretische Arbeit veröffentlicht worden. Er gewann für das logarithmische Dekrement die einfache Gleichung (R = Röhrenradius)

$$\vartheta = 8 \left(\frac{\pi R}{\lambda} \right)^2.$$

Als Beispiel für die vom erwähnten Verfasser durchgeführten experimentellen Bestimmungen von ϑ sei hier wiederholt, dass für eine bestimmte Röhre ohne Mündungsflansch bei F_R 560 Hz ein Dekrement von 0,09 gefunden wurde, ein Wert, dessen Grösse gut mit den hier gemessenen übereinstimmt.

V. Dämpfungsmessungen aus Schall-Oszillogrammen.

Methode. In diesem Kapitel wird eine Methode beschrieben, welche die Dämpfung akustischer Resonatoren aus der Form des Abklingvorganges nach kurzdauernder Erregung zu ermitteln gestattet. Sie beruht auf der Anwendung eines Verfahrens, das an der Abteilung für angewandte Physik nach Angaben von ZICKENDRAHT seit einiger Zeit für Nachhallmessungen gebraucht wird. Danach wird der zu untersuchende Resonator durch einen kurzdauernden, möglichst „rechteckigen“ Schallimpuls in seiner Eigenfrequenz erregt und der Abklingvorgang oszillographisch festgehalten.

Die Auswertung der Oszillogramme geht von der bekannten Definition des logarithmischen Dekrementes aus, welche festlegt¹⁴⁾:

$$\vartheta = \log \text{nat} \frac{A_n}{A_{n+1}} = \frac{1}{k} \cdot \log \text{nat} \frac{A_n}{A_{n+k}}$$

wo ϑ – logarithmisches Dekrement, A = Amplitude und n – Nummer der auf ein und derselben Seite der Zeitachse liegenden Amplituden des Abklingvorganges. Die Oszillogramme wurden für die Auswertung photographisch festgehalten.

Geräte. Als Impulsgeber diente eine Kontaktuhr der Firma Jaquet, welche alle Sekunden einen Kontakt von jeweils einer Fünftelsekunde Dauer schliesst. Da dieser Kontakt keine grosse und vor allem keine wesentlich induktive Belastung verträgt, wurde eine Elektronenröhre zur Betätigung eines Relais herangezogen in der Anordnung, wie sie Fig. 5 darstellt. Bei geöffnetem Uhrkontakt ist die Gittervorspannung genügend negativ, um den Anodenstrom zu sperren, während bei geschlossenem Kontakt das Gitter unmittelbar an der Kathode liegt und demzufolge das Relais durch den Anodenstrom betätigt wird. Der Widerstand von 80 k Ω verhindert einen Kurzschluss der Gitterspannungsquelle und begrenzt die Kontaktbelastung.

Da zu Vergleichszwecken der untersuchte Resonator derselbe sein sollte wie der im letzten Kapitel beschriebene, wurde auch das Kondensatormikrophon als sein Boden beibehalten. Da ferner der Eingangswiderstand des verwendeten Oszillographen nur etwa 1 M Ω betrug, musste die erste Stufe des früher beschriebenen Verstärkers, die das Mikrophon mit 20 M Ω belastet, ebenfalls mitverwendet werden.

Als Oszillograph kam die Type GM3156 von Philips zur Verwendung, der die Einstellung sehr langsamer Kippschwingungen gestattet, so dass man auch lange dauernde Abklingvorgänge zu

erfassen vermag. Ausserdem gestattet dieses Gerät, mit einfachen Mitteln ein einmaliges Durchlaufen der Zeitbasis zu bewirken, indem eine normalerweise an den Klemmen für äussere Synchronisierung liegende Sperrspannung (45 V) im gewünschten Moment kurzgeschlossen wird. Fig. 5 zeigt, dass dazu ein weiterer Federatz des Relais benützt wurde, so dass Erregung des Resonators und Auslösen des Oszillographen zwangsläufig gekuppelt waren.

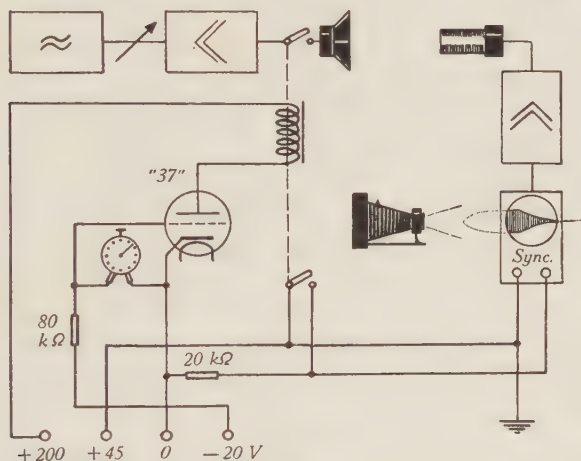


Fig. 5.

Messung von Dämpfungsdekrementen.

So konnten stehende Bilder, zwar nicht der einzelnen Wellenzüge, wohl aber ihrer Enveloppen erhalten werden, die sich dank der nachleuchtenden Kathodenstrahlröhre zeichnerisch festhalten liessen. Zum Photographieren wurde jedoch stets nur ein einziger Impuls verwendet, da die quantitative Auswertung der Oszillogramme hinsichtlich der Dämpfung auf die Wiedergabe der einzelnen Perioden angewiesen ist.

Resultate. Als Mittelwert aus fünf Photographien ergab sich für die Dämpfung des Resonators mit unverengter Mündung

$$\vartheta = 0,079 \text{ mit einem mittleren Fehler von } 0,003.$$

Die mit den verschiedenen Blenden in der Resonatormündung gewonnenen Werte für ϑ sind, zusammen mit den in der Tabelle 1 des vorherigen Kapitels angegebenen, in Tabelle 2 zusammengefasst. Hierbei wurden die Resonatoren jeweils in ihrer Grundschwingung erregt.







Da die in diesem Kapitel beschriebene Methode der Dämpfungsbestimmung nicht von einer gezeichneten Resonanzkurve abhängig ist, dürften ihre Ergebnisse sich den wahren Werten besser annähern als die Resultate des im Kapitel IV beschriebenen Verfahrens.

Tabelle 2.

Mündungs- durchmesser cm	ϑ ermittelt aus photographiertem Abklingvorgang	ϑ ermittelt aus Resonanzkurve (Kapitel IV)
6,5	0,079	0,076
4,1	0,085	0,082
2,6	0,125	0,13
1,65	0,27	0,28

Anwendungsbeispiel. Ein in der Bauakustik häufig auftretendes Problem ist die Bekämpfung des Trittschalles, der durch resonierende Hohlräume in Mauerwerk und Deckenkonstruktionen in unangenehmer Weise verstärkt werden kann, so dass Schwingungen dieser Hohlräume durch irgendwelche Massnahmen gedämpft werden müssen.

Tabelle 3.

Füllung	ϑ	Resonanz- frequenz	Bemerkungen zur Füllung
 leer	0,079	311 Hz	—
 Filz	0,20	290 Hz	Filzbelag, der Resonatorinnenwand dicht anliegend
 Papier	0,12	310 Hz	Sternförmiges Prisma aus steifem, glattem Papier
 Wellkarton	0,11	310 Hz	Wellkartonrohr, der Innenwand anliegend
 do.	0,49	277 Hz	Dichtgefügte Rolle aus Wellkarton, füllt Resonator ganz aus
 Watte	ca. 0,7	255 Hz	Lose Füllung aus Watteflocken

Die Wirksamkeit verschiedener Dämpfungsmaterialien und Anordnungen lässt sich quantitativ angeben, wenn Proben davon in einen Resonator eingeführt und die dadurch entstehenden Dämpfungszunahmen bestimmt werden. Dies wurde für einige öfter verwendete Materialien unter Benützung des mehrfach erwähnten Resonators durchgeführt. Die Tabelle 3, welche Beispiele für die Anwendung dieser Methode bieten soll, enthält die Resultate, welche, mit Ausnahme desjenigen der untersten Zeile, durch Auswertung photographischer Aufnahmen gewonnen wurden.

Man ersieht daraus, dass es zwecks Erreichen hoher Dämpfungen notwendig ist, den *Raum* des Resonators auszufüllen oder vielfach zu unterteilen, und nicht nur seine *Wände* mit schalldämpfendem Material zu belegen. Die Zusammenstellung zeigt weiter, dass sich ein Anhaltspunkt für die Grösse der Dämpfung schon ohne Betrachtung des Abklingvorganges aus der Erniedrigung der Resonanzfrequenz erhalten lässt.

VI. Die Mündungskorrektion.

Begriff. Die elementare Pfeifentheorie besagt, dass die Resonanzwellenlänge für eine offene Pfeife zweimal, für eine gedackte Pfeife viermal so gross sei wie die Pfeifenlänge. Schon mässige genaue Messungen zeigen jedoch Abweichungen in dem Sinne, dass die Resonanzwellenlänge grösser ist als errechnet, dass also die Druckknoten nicht in der Mündungsebene liegen, sondern um die Strecke a nach aussen verlagert sind. Diese Strecke wird als Mündungskorrektion oder noch treffender als das überstehende Pfeifenende bezeichnet. Manchmal wird unter dem Begriff Mündungskorrektion auch das Verhältnis dieser Strecke zum Pfeifenradius verstanden, welches im Folgenden mit α bezeichnet ist. Es ist also die Resonanzwellenlänge bei der offenen Pfeife (L = Pfeifenlänge)

$$\lambda_R = 2 \cdot (L + 2a) \quad (1a)$$

und bei der gedackten Pfeife

$$\lambda_R = 4 \cdot (L + a). \quad (1b)$$

Historisches. Schon HELMHOLTZ¹⁵⁾ wie auch RAYLEIGH¹⁶⁾ haben die Grösse der Mündungskorrektion zu errechnen versucht. Ersterer fand durch Lösen der Wellengleichung ein $\alpha = 0,785$, letzterer legte ein elektrisches Analogon zugrunde, fand $0,849 \geq \alpha \geq 0,785$ und gab etwas später den genaueren Wert $\alpha = 0,82$ an. Beide Autoren setzten dabei voraus, dass die Pfeife in einen unendlichen Halb-

raum münde, die Mündung also einen Flansch von sehr grosser Breite besitze.

Aus diesem Grunde zeigten die experimentell gewonnenen Resultate im allgemeinen einen kleineren Wert für α (Zusammenstellung bei KALAEHNE¹⁷). Der Einfluss eines breiten Mündungsflansches wurde verschiedentlich untersucht. So hat RAYLEIGH experimentell gefunden, dass α für eine Röhre ohne Mündungsflansch um etwa 0,2 zu erniedrigen sei. Es nähert sich dann dem Wert $\alpha = 0,60$, den HIGGS und TYTE¹⁸) in einer sorgfältig ausgeführten Arbeit für zylindrische Pfeifen ohne Flansch angegeben haben. Derselbe Wert ist auch in einer neueren Publikation angeführt¹⁹).

Nachdem also Untersuchungen über die Grösse der Mündungskorrektion für sehr grosse sowie für sehr kleine Flanschbreiten vorliegen, erscheint es geboten, die Abhängigkeit der Mündungskorrektion von der Flanschbreite oder genauer vom Verhältnis der Flanschbreite W (in den meisten Fällen durch die Wandstärke der Pfeife dargestellt) zum Röhrenradius R zu ermitteln.

Ansatz. Es werden nachstehende vier Ausgangspunkte zugrundegelegt:

1. Die obere Grenze für α ist 0,82 und wird erreicht, wenn die Mündung in einer unendlich grossen Ebene liegt (RAYLEIGH).
2. Die untere Grenze für α ist 0,60 und entspricht einer Röhre ohne Mündungsflansch (HIGGS and TYTE).
3. Bei konstantem Röhrenradius wächst α mit zunehmender Flanschbreite.
4. Bei konstanter Flanschbreite sinkt α mit zunehmendem Radius und nähert sich asymptotisch dem Wert 0,60.

Für die Mündungskorrektion lässt sich empirisch etwa folgende Funktion ansetzen:

$$\alpha = 0,60 + 0,22 \cdot e^{-k \frac{W}{R}}. \quad (2)$$

Die Werte für α ergeben sich dabei experimentell aus der Schallgeschwindigkeit c , der gemessenen Resonanzfrequenz F_R , der Pfeifenlänge L und dem Pfeifenradius R . Es ist nach Gleichung (1) für offene Pfeifen

$$\alpha = \frac{\lambda_R}{4} - \frac{L}{2} = \frac{c}{4 F_R} - \frac{L}{2} \quad (3a)$$

und für gedackte Pfeifen

$$\alpha = \frac{\lambda_R}{4} - L = \frac{c}{4 F_R} - L \quad (3b)$$

Generell gilt ferner

$$\alpha = \frac{a}{R}. \quad (4)$$

Frequenzmessung. Verwendet man als Indikator eine schallempfindliche Flamme, so bewirkt bei weiten Röhren und solchen mit breitem Flansch die örtliche Erwärmung eine Veränderung der Schallgeschwindigkeit in unkontrollierbarem Masse. Aus diesem Grunde wurde für die Messung der Resonanzfrequenzen eine Hitzdrahtanordnung benützt, die infolge der kleinen vom Hitzdraht umgesetzten Leistung (etwa $\frac{1}{7}$ Watt) nur eine vernachlässigbar kleine Erhöhung der Lufttemperatur im Resonator bewirkte.

Die Einrichtung lehnt sich an die von RICHARDSON²⁰⁾ und LOEBENSTEIN⁶⁾ beschriebenen Anordnungen an. Die Brücke wird jedoch mit Wechselstrom gespiesen, und als Indikator dient ein Verstärker mit nachfolgendem Gleichrichter und Gleichstromverstärker. Somit kann das sonst übliche hochempfindliche Galvanometer erübrigt werden, welches bei eventuell durchbrennendem Hitzdraht stets erheblich gefährdet ist. In der vorliegenden Anordnung sinkt der Strom im Messinstrument bei steigender Eingangswechselspannung.

Diskussion der Fehlerquellen. Es ist die Verminderung der Schallgeschwindigkeit im Innern enger Röhren zu berücksichtigen. Zu ihrer Errechnung dient die HELMHOLTZ-KIRCHHOFFSche Formel²¹⁾

$$c_R = c_0 \left(1 - \frac{\gamma}{2 R \cdot \sqrt{\pi F}} \right) \quad (5)$$

wo c_0 die Schallgeschwindigkeit in freier Luft, R den Röhrenradius, F die Frequenz und γ eine Konstante bedeuten, welche letztere von den Eigenschaften des in der Röhre befindlichen Gases und vom Material der Röhre abhängt. Die Gültigkeit dieser Formel für das hier verwendete Röhrenmaterial (Haefelit*) wurde experimentell verifiziert und dabei der Wert $\gamma = 0,47 \text{ cm s}^{-\frac{1}{2}}$ gewonnen.

Bequemer ist für den praktischen Gebrauch die Formel

$$\Delta c = 4580/R \cdot \sqrt{F} \quad (\Delta c \text{ in cm/s, } R \text{ in cm})$$

wo $\Delta c = c_0 - c_R$ die Verringerung der Schallgeschwindigkeit bedeutet und $c_0 = 34400 \text{ cm/s}$ gesetzt wurde (entspr. $T = 20^\circ\text{C}$).

Unter Berücksichtigung der von LÜBCKE²²⁾ angegebenen wahrscheinlichsten Werte für die Schallgeschwindigkeit in freier Luft darf angenommen werden, dass der mögliche Fehler, der mit der Schallgeschwindigkeit in die Rechnung eingeht, höchstens $1\frac{0}{100}$ von

*) Haefelit ist Papier, welches mit Bakelit imprägniert und dann unter Hitze und Druck auf Wickeldorne aufgebracht wird. (Nach Angaben der Firma Haefely & Cie., welche die Röhren in verdankenswerter Weise zur Verfügung stellte.)

deren wahren Werte beträgt. Die Prüfung der Rekonstruierbarkeit einer gemessenen Resonanzfrequenz ergab, dass der mögliche Fehler der Frequenzmessung bis 2^0_{00} betragen kann, so dass also, wenn c_R der gerechnete Wert der Schallgeschwindigkeit, F_R die gemessene Resonanzfrequenz und dieselben Buchstaben ohne Indices die entsprechenden wahren Werte bedeuten,

$$1,003 \cdot c_R / 4F_R \geq c / 4F \geq 0,997 \cdot c_R / 4F_R.$$

Daraus folgt (vgl. Gleichung (3)) sowohl für offene als auch für gedackte Pfeifen

$$J' = a_{\max} - a_{\min} = 0,003 \cdot c_R / 2 \cdot F_R \quad (6)$$

$$J = \alpha_{\max} - \alpha_{\min} = 0,003 \cdot c_R / 2 R \cdot F_R \quad (7)$$

Tabelle 4.

Reson. Nr.	L cm	R cm	W cm	F_R Hz	T °C	c_R cm/s	a cm	α	R/W
1	50,1	7,45	0,66	286,5	18,0	34226	4,83	$0,648 \pm 0,012$	11,3
2	49,9	6,28	0,30	298,4	19,0	34279	3,77	$0,601 \pm 0,014$	20,9
3	50,0	5,40	0,75	298,0	18,0	34213	3,70	$0,696 \pm 0,016$	7,20
4	50,1	4,98	0,51	301,0	18,0	34209	3,36	$0,674 \pm 0,017$	9,95
5	50,0	4,27	0,25	310,0	18,0	34200	2,63	$0,617 \pm 0,019$	17,1
6	50,1	3,50	0,56	312,5	19,5	34277	2,37	$0,677 \pm 0,023$	6,25
7	50,2	3,00	1,05	313,5	19,5	34265	2,22	$0,740 \pm 0,027$	2,85
8	50,1	2,51	0,48	318,7	19,0	34218	1,79	$0,713 \pm 0,032$	5,35
9	50,0	1,85	0,14	326,5	19,0	34182	1,17	$0,633 \pm 0,043$	13,2
10	50,1	1,53	0,93	325,0	17,5	34063	1,15	$0,752 \pm 0,052$	1,65
11	50,2	1,00	1,08	329,0	19,5	34094	0,83	$0,830 \pm 0,078$	0,96
12	50,1	7,45	0,66	155,5	18,0	34211	4,90	$0,658 \pm 0,021$	11,3
13	49,9	6,28	0,30	159,1	18,0	34202	3,84	$0,612 \pm 0,026$	20,9
14	50,0	5,40	0,75	159,5	18,0	34193	3,59	$0,666 \pm 0,030$	7,20
15	50,1	4,98	0,51	160,5	19,0	34247	3,24	$0,650 \pm 0,032$	9,95
16	50,0	4,27	0,25	162,1	19,0	34235	2,80	$0,657 \pm 0,037$	17,1
17	50,1	3,50	0,56	162,8	18,5	34187	2,41	$0,691 \pm 0,045$	6,25
18	50,2	3,00	1,05	163,3	18,5	34169	2,13	$0,710 \pm 0,053$	2,85
19	50,1	2,51	0,48	164,5	18,5	34146	1,79	$0,713 \pm 0,063$	5,35
20	50,1	1,53	0,93	166,0	18,5	34053	1,18	$0,775 \pm 0,101$	1,65
21	50,2	1,00	1,08	166,4	18,5	33928	0,84	$0,840 \pm 0,155$	0,96
22	89,5	3,00	0,23	184,0	17,5	34117	1,86	$0,620 \pm 0,047$	13,1
23	23,2	4,57	0,22	327,0	17,0	34144	2,85	$0,623 \pm 0,017$	21,2
24	23,2	4,57	18,45	316,5	17,0	34144	3,72	$0,813 \pm 0,018$	0,25

Messungen. Für die praktische Anwendung wird in Gleichung (6) für c_R als mittlerer Wert 34400 cm/s eingesetzt, woraus folgt

$$J' = 51,5/F_R$$

$$\text{weiter für die offene Pfeife: } a = \left(\frac{\lambda_R}{4} - \frac{L}{2} \right) \pm \frac{25,7}{F_R}$$

$$\text{und für die gedackte Pfeife: } a = \left(\frac{\lambda_R}{4} - L \right) \pm \frac{25,7}{F_R}.$$

In der Tabelle 4 sind nun die geometrischen Daten von 24 untersuchten Resonatoren, ihre Resonanzfrequenzen, die in ihnen auftretenden Schallgeschwindigkeiten und die daraus errechneten Werte für a und α mit den Fehlern der letzteren zusammengestellt. Bei den Nummern 1 bis 11 und bei Nr. 22 handelt es sich um offene, bei den übrigen um gedackte Pfeifen.

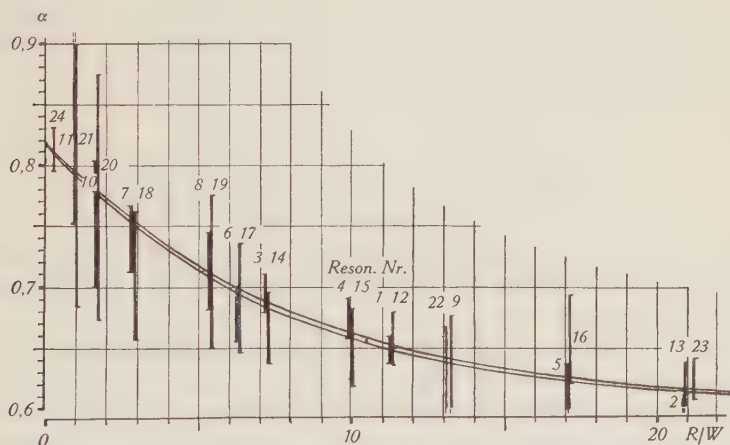


Fig. 6.

Darstellung der Tabelle 4.

In der Fig. 6 sind die gewonnenen Werte für α für alle Resonatoren eingetragen. Die Länge der jedem Resonator zugeordneten Strecke stellt das Intervall J dar (Gleichung (7)). Soll nun der Parameter k aus der Gleichung (2) gefunden werden, so müssen diejenigen Exponentialkurven bestimmt werden, die durch den Punkt ($R/W = 0$, $\alpha = 0,82$) gehen und alle eingezeichneten Intervalle durchsetzen. Die beiden extremen Kurven, welche diese Bedingung erfüllen, besitzen die Parameter $k = 0,129$ resp. $k = 0,136$.

Zusammenfassung. Die Mündungskorrektion der Öffnung einer zylindrischen Pfeife vom Radius R und der Flanschbreite W errechnet sich mittels der Formel

$$\alpha = 0,60 + 0,22 \cdot e^{-k \frac{R}{W}} \quad (2)$$

k ist dabei eine Konstante, deren Wert zu $0,129 \leq k \leq 0,136$ bestimmt wurde. Aus α , R und der Pfeifenlänge kann die Resonanzwellenlänge ermittelt werden. Soll die Berechnung der Resonanzfrequenz mit grosser Genauigkeit erfolgen, so ist die Abnahme der Schallgeschwindigkeit im Innern der Pfeife zu berücksichtigen.

Beispiele. Die ersten zwei Beispiele sind der Literatur entnommen, das dritte befasst sich mit einem eigens hergestellten Resonator, während anschliessend die Resonanzfrequenzen der obigen 24 Resonatoren berechnet und mit den gemessenen Werten verglichen werden sollen.

1. HARDUNG fand keinen messbaren Unterschied zwischen den Resonanzfrequenzen einer Pfeife von 0,9 cm Radius bei Flanschbreiten von $W' = 2,6$ cm resp. $W'' = 6,6$ cm. (HARDUNG²) S. 344.)

Die Rechnung nach Gleichung (2) ergibt

$$\begin{array}{ll} \alpha' = 0,809 & \alpha'' = 0,816 \\ a' = 0,728 \text{ cm} & a'' = 0,735 \text{ cm} \\ \lambda'/4 = 5,228 \text{ cm} & \lambda''/4 = 5,235 \text{ cm} \end{array}$$

und damit einen Unterschied von $1,30_{00}$ oder rund 2 Hz. Dieser Wert liegt tatsächlich innerhalb der von HARDUNG angegebenen Messfehler.

2. ZICKENDRAHT errechnete die Resonanzfrequenz eines beidseitig offenen Zylinderresonators von $L = 34,9$ cm, $R = 2,55$ cm und $W = 0,1$ cm bei 20°C zu 466 Hz, indem er für die Mündungskorrektion den Wert $\alpha = \pi/4 = 0,785$ zugrundelegte. (ZICKENDRAHT⁵) S. 533.) Die Messung ergab jedoch $F_R = 452$ Hz.

Die Berechnung nach Gleichung (2) ergibt $\alpha = 0,608$.

Es folgt: $2a = 3,1$ cm $\lambda = 76,0$ cm.

Da die Schallgeschwindigkeit in dieser Röhre bei 20°C 34295 cm/s beträgt, errechnet sich die Resonanzfrequenz zu 451,3 Hz und ergibt damit eine wesentlich bessere Übereinstimmung mit dem gemessenen Wert von 452 Hz.

3. Asymmetrischer Resonator, dargestellt durch eine beidseitig offene Pfeife, deren eine Mündung einen Flansch von 46 cm Durchmesser trägt. $L = 35,4$ cm, $W' = 0,1$ cm, $W'' = 20,45$ cm, $R = 2,55$ cm, $T = 16,5^\circ \text{C}$; gemessene Resonanzfrequenz 438 Hz.

Die Rechnung zeigt: $\alpha' = 0,608$, $\alpha'' = 0,785$, $a' + a'' = 3,55$ cm, $\lambda = 77,9$ cm, $c_R = 34084$ cm/s und damit $F_R = 437,5$ Hz.

4. Die Tabelle 5 enthält die Gegenüberstellung der in der Tabelle 4 enthaltenen gemessenen Resonanzfrequenzen einerseits und den aus den geometrischen Daten der Resonatoren gemäss Gleichung (2) errechneten Resonanzfrequenzen andererseits. Diese Tabelle soll die Brauchbarkeit der in diesem Kapitel beschriebenen Methode dartun.

Tabelle 5.

Res. Nr.	1	2	3	4	5	6	7	8	
berechnet	287	297	298	301	310	311	313	319	Hz
gemessen	286,5	298,4	298,0	301,0	310,0	312,5	313,5	318,7	Hz
Res. Nr.	9	10	11	12	13	14	15	16	
berechnet	326	324	329	156	159	159	161	163	Hz
gemessen	326,5	325,0	329,0	155,5	159,1	159,5	160,5	162,1	Hz
Res. Nr.	17	18	19	20	21	22	23	24	
berechnet	163	163	165	166	167	183	328	317	Hz
gemessen	162,8	163,3	164,5	166,0	166,4	184,0	327,0	316,5	Hz

Resonatorenbündel. Die Mündungskorrektion zylindrischer Pfeifen lässt sich, ausser durch Flansche oder ähnliche Anordnungen, auch dadurch beeinflussen, dass der zu untersuchende Resonator mit mehreren anderen Resonatoren von derselben Form umgeben wird.

Die für die folgenden Untersuchungen benützten Resonatorenbündel bestanden aus Einzelresonatoren von 10,35 cm Länge und 0,81 cm Radius bei einer Wandstärke von 0,03 cm. Die berechnete Eigenfrequenz bei $T = 17,5^\circ\text{C}$ ergab 785 Hz, gemessen wurde 783 Hz für einen einzelnen Resonator.

Das Bündel mit 7 Resonatoren zeigte eine Resonanzfrequenz von 744 Hz, wobei die als Indikator dienende schallempfindliche Flamme in der Achse des mittleren Resonators aufgestellt war. Für diesen errechnet sich daher eine Mündungskorrektion von $\alpha = 1,43$, und es ist nach dem weiter oben Besprochenen klar, dass dieser hohe Wert nicht durch die geometrische Konfiguration bewirkt wird, würde doch einem sehr grossen Flansch erst ein α von 0,82 entsprechen. Es sind also die konphasen Schwingungen der umge-

benden Resonatoren, welche die Mündungskorrektion des mittleren Resonators so stark erhöhen, indem sie die Schallausbreitung an seiner Mündung behindern.

Diese Vorstellung konnte durch einfache Experimente bestätigt werden: Werden die sechs äusseren Resonatoren durch Einbringen von Watte am Mitschwingen verhindert, so ist die Resonanzkurve des mittleren Resonators beinahe mit derjenigen einer einzelnen Röhre identisch (Resonanzfrequenzen 782 resp. 783 Hz). Dasselbe Resultat zeigt sich bei den nächstgrösseren Bündeln: Eine dämpfende Füllung der zwölf äusseren Resonatoren einer Neunzehnergruppe bewirkt eine weitgehende Angleichung ihrer Resonanzkurve an diejenige der Siebenergruppe (Resonanzfrequenzen 739 resp. 744 Hz). Die geringen Unterschiede zwischen den verglichenen Frequenzen werden durch die Gegenwart der jeweils unbenützten Resonatoren erklärt. Sie bilden Hindernisse in der Nähe der Mündungen der aktiven Resonatoren und verringern daher deren Eigenfrequenzen um kleine Beträge.

Vergössert man die Zahl der Elemente, so verändert sich die Resonanzkurve derart, dass man immer weniger von einer eigentlichen Resonanzfrequenz sprechen kann; die Intensität des Mitschwingens bleibt vielmehr über einen grösseren Frequenzbereich nahezu konstant, wenn die schallempfindliche Flamme als Indikator sich in der Achse des mittleren Resonators befindet. Je weiter sie nach dem Rande zu verschoben wird, um so schmaler wird die Resonanzkurve und um so mehr verschiebt sich ihr Maximum zu höheren Frequenzen. Die genannte Abflachung der Resonanzkurve kann als Kopplungserscheinung gedeutet werden: die Koppelung zwischen den nahe beisammen liegenden Resonator-mündungen bewirkt, dass sich vor dem zentralen Resonator auch die Eigenschaften weiter aussen liegender Elemente bemerkbar machen. Es zeigt sich dort eine Superposition der Resonanzkurven aller Elemente, deren Mündungskorrekturen und damit Eigenfrequenzen über ein gewisses Intervall verteilt sind.

VII. Strömungen in und vor der Mündung.

Seit langem ist es bekannt, dass die Medien in der Umgebung schwingender Körper in bestimmter Weise in Bewegung geraten (DVORAK²³)²⁴), RAYLEIGH²⁵), ANDRADE¹), WACHSMUTH und AUER²⁶) SCHUSTER und MATZ²⁷)). Derartige stationäre Strömungen können unter geeigneten Umständen zu Messzwecken verwendet werden (Schalldüsen nach SELL²⁸), HARDUNG²)).

Das Ziel der in diesem Kapitel beschriebenen Untersuchungen war die Gewinnung einer Topographie der Strömungsrichtungen und -geschwindigkeiten der Luft vor der Mündung eines erregten Resonators. Isotherme Umhüllungen, wie sie z. B. ANDRADE zur Vermeidung von störenden, durch Temperaturdifferenzen erzeugten Strömungen verwendete, kamen für die Untersuchung einer Resonatormündung nicht in Betracht, da diese ja in einen freien Raum führen soll. Um den Effekt störender Einflüsse gering zu halten, musste der Resonator so gewählt werden, dass die Strömungen kräftig auftraten und mit einem relativ unempfindlichen Indikator untersucht werden konnten.

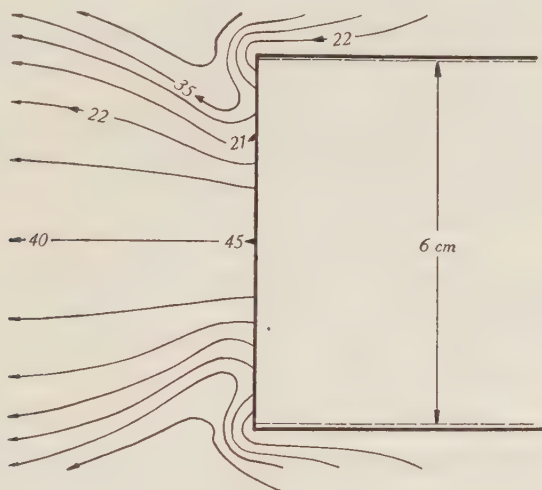


Fig. 7.

Stationäre Strömung nahe der Mündung eines in seiner Eigenschwingung erregten Resonators von 160 cm Länge. Werte für V_L in cm/s.

Als Resonator wurde deshalb ein beidseitig offenes Messingrohr von 160 cm Länge und 6 cm Innendurchmesser benützt, das, horizontal aufgestellt, in der üblichen Weise durch den Lautsprecher in seiner Eigenschwingung erregt wurde.

Als Indikator diente ein an einem dünnen Glasfaden aufgehängtes Wachskügelchen. Vorversuche ergaben als günstige Dimensionen

Kugeldurchmesser	0,19 cm
Fadendurchmesser	0,014 cm
Fadenlänge	24,7 cm

Die Eichung dieses Indikators geschah in einem kleinen Windkanal, bei welchem eine abgemessene Luftmenge in bestimmter Zeit durch einströmendes Wasser durch ein langes gerades Rohr aus dem Vorratsgefäß ausgestossen wurde.

Bei einem an dem Orte der Resonatormündung vom Lautsprecher erzeugten Schalldruck von $5,6 \text{ dyn/cm}^2$ (89 Phon) wurde das in der Fig. 7 gezeigte Strömungsbild gewonnen. Die Figur enthält einige an interessanten Stellen gemessene Werte für die Strömungsgeschwindigkeit in cm/s . Die Geschwindigkeitsmessung in den nahe der Röhrenwandung ins Innere hineinlaufenden Stromlinien war mit dem verwendeten Indikator nicht möglich, da der Glasfaden einen Ausschlag der Kugel ins Röhreninnere nicht zuließ. Ein Anhaltspunkt für die nahe der Röhrenwand auftretenden Geschwindigkeiten lässt sich jedoch auf Grund der Überlegung gewinnen, dass in der Zeiteinheit die in die Röhre eintretende und die sie verlassende Luftmenge dieselbe ist, dass also, über die ganze Mündungsfläche betrachtet

$$\int V_L dQ = 0.$$

Dies bedeutet im hier vorliegenden Fall einer kreiszylindrischen Röhre vom Radius R :

$$2\pi \int_0^R V_L(r) \cdot r dr = 0.$$

Aus der Fig. 7 lässt sich entnehmen, dass die Grenze zwischen den Gebieten von ein- und ausströmender Luft bei $r = 2,3 \text{ cm}$ liegt. Damit wird

$$\int_0^{2,3 \text{ cm}} V_L(r) \cdot r dr = - \int_{2,3 \text{ cm}}^{3 \text{ cm}} V_L(r) \cdot r dr.$$

Legt man, als Annäherung, einen parabolischen Verlauf der axialen Komponente der Strömungsgeschwindigkeit für beide Gebiete zugrunde, so ergibt die numerische Auswertung obiger Gleichung eine Maximalgeschwindigkeit der einströmenden Luft von 55 cm/s . Die pro Sekunde ein- und austretende Luftmenge beläuft sich auf 375 cm^3 .

Derartige Strömungsbilder können einen Beitrag leisten zur weiteren Klärung ponderomotorischer Wirkungen, welche von akustischen Resonatoren ausgeübt werden. Solche wurden von DVORAK erstmals beschrieben und von HIPPE³⁰⁾ eingehend untersucht.

Zusammenfassung.

Zunächst wurde gezeigt, dass die von ZICKENDRAHT beschriebene Feinstruktur von Resonanzkurven akustischer Resonatoren durch Interferenzen im Raum vorgetäuscht worden war.

Auf Grund dieser Erkenntnis wurde ein Verfahren angegeben, um die wahre Resonanzkurve aufzunehmen. Aus den so gewonnenen Kurven konnten die Dämpfungsdekremente der Resonatoren ermittelt werden.

Die so gewonnenen Dekremente stimmten gut mit den Werten überein, die sich aus den photographisch gewonnenen Abklingkurven der kurzzeitig in ihren Eigenfrequenzen erregten Resonatoren berechnen liessen. Die Anwendungsmöglichkeit dieser letzteren Methode auf bauakustische Aufgaben wurde experimentell erwiesen.

Die bekannten Gleichungen für die Mündungskorrektur konnten durch Einführen der Mündungsflanschbreite verbessert werden. Einige Untersuchungen an Bündeln aus mehreren gleichen, parallel zu einander angeordneten Zylinderresonatoren ergaben, ohne Anspruch auf Vollständigkeit oder Abgeschlossenheit zu erheben, Beiträge zu den Abschnitten über Resonanzkurven und Mündungskorrektur.

Schliesslich konnte mit einem einfachen Verfahren eine Topographie der Strömung in der Mündung eines erregten Resonators gewonnen werden.

Die vorstehend beschriebenen Arbeiten wurden unter der Leitung von Herrn Prof. Dr. H. ZICKENDRAHT an der Abteilung für angewandte Physik des physikalischen Instituts der Universität Basel durchgeführt.

Literatur.

- ¹⁾ E. N. DA C. ANDRADE, Proc. Roy. Soc. **134A**, 446 (1931).
- ²⁾ VIKTOR HARDUNG, H. P. A. **9**, 343 (1936).
- ³⁾ WERNER LEHMANN, H. P. A. **6**, 20 (1933).
- ⁴⁾ MANFRED BUKOFZER, Zs. f. Physik **99**, 645 (1936).
- ⁵⁾ HANS ZICKENDRAHT, H. P. A. **14**, 525 (1941).
- ⁶⁾ ANNIE LOEBENSTEIN, H. P. A. **16**, 93 (1943).
- ⁷⁾ HANS FREI, Elektroakustische Untersuchungen in Hallräumen, Diss. ETH 1935.
- ⁸⁾ H. GEMPERLEIN, Zs. f. Hf.-Technik u. El.-Akustik **52**, 193 (1938).
- ⁹⁾ ERWIN MEYER, GERHARD BUCHMANN, ARNOLD SCHOCH, Akust. Zs. **5**, 352 (1940).
- ¹⁰⁾ H. SELL, Hdb. d. Physik Geiger-Scheel **8**, 550 (1927).
- ¹¹⁾ E. LÜBCKE, Hdb. d. Exp.-Physik Wien-Harms **17/II**, 186 (1934).
- ¹²⁾ ALFRED KALAEHNE, Grundzüge der mathematisch-physikal. Akustik **1**, 97 (1910).

- 13) H. LICHTÉ, Zs. f. techn. Physik **5**, 471 (1924).
 - 14) J. ZENNECK, Elektromagnet. Schwingungen u. drahtlose Telephonie **375** (1905).
 - 15) H. v. HELMHOLTZ, Wissenschaftliche Abhandlungen **1**, 366 (1882).
 - 16) LORD RAYLEIGH, Theory of Sound **2**, 180 (1896).
 - 17) ALFRED KALAEHNE, Hdb. d. Physik Geiger-Scheel **8**, 257 (1927).
 - 18) S. A. HIGGS und L. C. TYTE, Phil. Mag. (7) **4**, 1099 (1927).
 - 19) A. WOOD, The Physics of Music **126** (1945).
 - 20) E. G. RICHARDSON, Proc. Roy. Soc. **112**, 522 (1926).
 - 21) H. v. HELMHOLTZ, Wissenschaftliche Abhandlungen **1**, 385 (1882).
G. KIRCHHOFF, Pogg. Ann. **134**, 191 (1868).
 - 22) E. LÜBCKE, Hdb. d. Physik Geiger-Scheel **8**, 624 (1927).
 - 23) V. DVORAK, Pogg. Ann. **157**, 2 (1876).
 - 24) V. DVORAK, Wied. Ann. **3**, 328 (1878).
 - 25) LORD RAYLEIGH, Phil. Trans. **175**, 1 (1883).
 - 26) R. WACHSMUTH und H. AUER, Zs. f. Physik **47**, 323 (1928).
 - 27) K. SCHUSTER und W. MATZ, Akust. Zs. **5**, 349 (1940).
 - 28) H. SELL, Zs. f. techn. Physik **5**, 573 (1924).
 - 29) G. HIPPE, Annalen der Physik **82**, 161 (1927).
-

Über das Auflösungsvermögen von Mikroskop und Fernrohr

von H. Greinacher, Bern.

(24. IX. 1946.)

Es ist üblich, das Auflösungsvermögen eines Mikroskops nach **ABBÉ** aus der Beugung der Lichtstrahlen am Objekt und dasjenige des astronomischen Fernrohrs durch die Beugung an der Objektivöffnung zu berechnen. Ein optisches Gitter wird nur dann im Mikroskop abgebildet, wenn mindestens der gebeugte Strahl 1. Ordnung ins Objektiv gelangt. Hieraus berechnet sich als kleinster Abstand zweier Gitterstriche, der noch wahrgenommen wird, d. h. als das Auflösungsvermögen in bekannter Weise

$$\varepsilon = \frac{\lambda}{n \sin \varphi} \quad (1)$$

(bei \perp Beleuchtung), wo λ die Lichtwellenlänge, $n \sin \varphi$ die numerische Apertur bedeuten. Andererseits findet man für den kleinsten Winkel, unter dem zwei ferne, leuchtende Punkte im Fernrohr noch getrennt werden können, den Wert

$$\sin \alpha = 0,61 \frac{\lambda}{r}, \quad (2)$$

wo $2r$ den Durchmesser des Objektivs bedeutet. Jeder Lichtpunkt

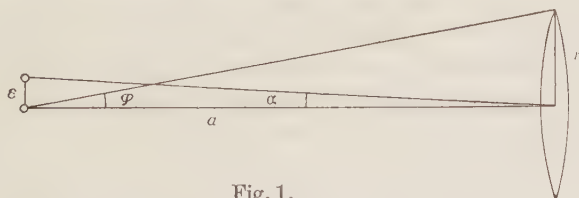


Fig. 1.

erzeugt ein helles Beugungsscheibchen mit konzentrischen schwächeren Ringen. Die Formel folgt aus der Annahme, dass das eine Scheibchen mit dem ersten dunklen Ring des zweiten zusammenfällt.

Um das Auflösungsvermögen der beiden Instrumente miteinander vergleichen zu können, wird man etwa (2) in die Form von (1) bringen. Es ist, da der Abstand a (Fig. 1) bei Fernrohren gross ist,

$\sin \alpha = \frac{\varepsilon}{a}$, wo jetzt ε den Abstand der beiden Lichtpunkte bedeutet, und $\sin \varphi = \frac{r}{a}$. Da hieraus $\sin \alpha = \frac{\varepsilon \sin \varphi}{r}$, so folgt für

$$\varepsilon = 0,61 \frac{\lambda}{\sin \varphi}. \quad (2a)$$

Für das Fernrohr findet man also das 0,61fache der Auflösung des Mikroskops, d. h. jenes wäre leistungsfähiger als dieses. Dieses Resultat ist zunächst befremdend, da Konstruktion und Abbildungsweise von Mikroskop und Fernrohr im Prinzip durchaus gleich sind. Man hat indessen zu bedenken, dass die zur Berechnung verwendete Voraussetzung beim Fernrohr (Zusammenfallen von Beugungsscheibchen und erstem dunklem Ring) nur eine plausible Annahme repräsentiert, und dann namentlich, dass beim Mikroskop Beugung an einem durchstrahlten Objekte und beim Fernrohr ein Selbstleuchter vorausgesetzt sind.

Man kann nun aber zeigen, dass auch unter Zugrundelegung eines Beugungsgitters beim Fernrohr ein anderes Resultat zu erwarten ist als beim Mikroskop. Bei Ableitung von (1) ist an-

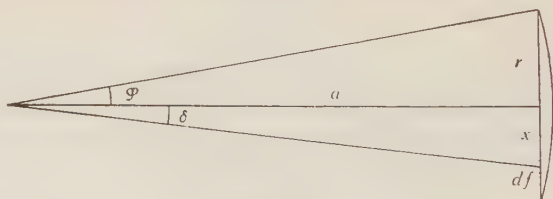


Fig. 2.

genommen, dass das Gitter \perp durchstrahlt wird; es treffen nur achsenparallele Strahlen auf. Beim Fernrohr ist diese Annahme unzulässig. Ein leuchtender Punkt auf der Achse wird immer das ganze Objektiv mit Strahlen erfüllen. Wir haben also alle Inzidenzwinkel zwischen 0 und φ . Es erhebt sich daher die Frage, welches ist das Auflösungsvermögen in einem solchen Falle.

Beim Mikroskop wissen wir, dass das Auflösungsvermögen bei schräger Beleuchtung zunimmt und praktisch den doppelten Wert erreicht, wenn der einfallende Strahl auf den Objektivrand auftrifft. Ein Strahl unter dem Winkel δ (Fig. 2) wird ein Auflösungsvermögen $\varepsilon_\delta = \frac{\lambda}{\sin(\varphi + \delta)}$ erzielen ($n=1$ gesetzt). Bei allseitiger Bestrahlung wird man annehmen dürfen, dass dann ein *mittleres Auflösungsvermögen* zwischen dem ein- und zweifachen Wert resultiert. Um dieses zu berechnen, machen wir die naheliegende Annahme, dass jedes Flächenelement des Objektivs nach Massgabe

der Strahlenmenge, die hindurchgeht, zum Auflösungsvermögen beiträgt. Wir setzen also für das mittlere Auflösungsvermögen ε an

$$\varepsilon \cdot f = \int \varepsilon_{\delta} df$$

bzw.

$$\varepsilon = \frac{\int \frac{\lambda}{\sin(\varphi + \delta)} \cdot df}{f}. \quad (3)$$

Dieser Ausdruck lässt sich für das Fernrohr unschwer berechnen, da es sich hier um kleine Winkel φ und δ handelt. Wir haben

$$\sin(\varphi + \delta) \asymp \frac{r+x}{a}.$$

Das ringförmige Flächenelement mit konstantem δ ist $df = 2\pi x dx$; und da $f = \pi r^2$, so ergibt sich

$$\varepsilon = \frac{2\lambda a}{r^2} \int_0^r \frac{x dx}{r+x}. \quad (3a)$$

Man kann unter Verwendung der Substitution $r+x=y$ unmittelbar integrieren und erhält

$$\varepsilon = \frac{2\lambda a}{r} (1 - \log 2) \quad (4)$$

oder in Zahlen

$$\varepsilon = 0,613 \cdot \frac{\lambda a}{r}$$

bzw.

$$\varepsilon = 0,613 \cdot \frac{\lambda}{\sin \varphi}. \quad (4a)$$

Die Übereinstimmung mit Ausdruck (2a) ist bemerkenswert. Man gelangt somit zum selben Wert für das Auflösungsvermögen eines Fernrohrs, wenn man die Beugung der Strahlen eines Selbstleuchters am Objektiv zugrunde legt und wenn man ein durchstrahltes Gitter als Objekt verwendet unter Berücksichtigung des Umstandes, dass hier ein Strahlenkegel auf das Objektiv auffällt.

Für ein Mikroskop findet man nach dieser Darstellung gemäss (1) darum einen andern Zahlenfaktor, weil hier ein beugendes Gitter vorausgesetzt ist, das durch ein achsennahes und -paralleles Strahlenbündel durchsetzt ist. Wird das Objekt aber von einem das ganze Objektiv erfüllenden Strahlenkegel durchstrahlt, wie das übrigens häufig der Fall ist, so resultiert auch hier ein kleinerer Zahlenwert. Dieser wird indessen nicht genau mit dem in (4)

angegebenen übereinstimmen, da bei der Berechnung die für ein Fernrohr mit grossem Objektabstand gemachten Vernachlässigungen nicht vorgenommen werden dürfen. Durch den Begriff des gemischten oder mittleren Auflösungsvermögens lassen sich somit die scheinbaren Diskrepanzen zwischen den gebräuchlichen Formeln (1) und (2) leicht erklären und auflösen. Man wird jedoch zunächst mit Recht die Frage stellen, ob es sich bei diesem zusammengesetzten Auflösungsvermögen nur um eine mögliche Annahme oder um eine Tatsache handelt. Es schien mir daher nicht überflüssig, diese Frage experimentell abzuklären.

Um festzustellen, welches Ergebnis für das Zusammenwirken zweier verschiedener Auflösungsvermögen zustandekommt, wurde folgende Versuchsanordnung gewählt. Vor einem Mikroskop M (Fig. 3) wurde ein optisches Gitter G von passender Feinheit angebracht. Dieses konnte abwechselungsweise oder gleichzeitig durch

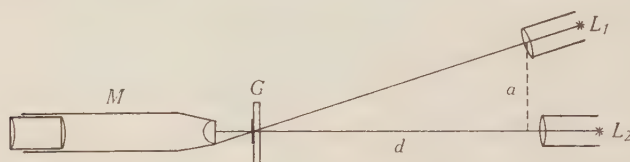


Fig. 3.

zwei Lämpchen $L_1 L_2$ mit parallelem Licht bestrahlt werden. Verwendet wurde ein Zeissobjektiv, num. Ap. 0,17, wie es für die ABBÉschen Übungsversuche zur Abbildung des Mikroskops benutzt wird. Als Okular erwies sich Zeiss 17 \times , zur Not auch Zeiss 10 \times brauchbar. G war ein nach chemischem Ätzverfahren hergestelltes Gitter mit 5000 Strichen auf 1 cm. Dies entspricht einem Winkel des ersten gebeugten Strahles mit dem Sinuswert 0,25 ($\lambda = 5 \cdot 10^{-4}$ mm gesetzt). Da das erste Beugungsmaximum also nicht mehr ins Objektiv eintreten konnte, so erhielt man bei \perp Beleuchtung keine Auflösung der Gitterstruktur. Diese trat erst bei seitlicher Beleuchtung in Erscheinung. L_1 wurde so weit seitlich verschoben, dass die Strahlen gerade noch ins Objektiv eintreten konnten. Dies war der Fall bei $a = 8$ cm und $d = 40$ cm. Bei herausgenommene Okular sah man dann im Tubus am einen seitlichen Rand des Gesichtsfeldes den einen hellen Fleck des ungebeugten Lichtes und am andern gegenüber das zu einem Spektrum ausgezogene Licht 1. Ordnung. Dass dieses sekundäre Licht die Gitterabbildung erzeugte, konnte sehr einfach nach Art der ABBÉschen Versuche nachgewiesen werden. Es genügte, einen Finger seitlich vor das Objektiv soweit heranzuschieben, bis das Beugungsbild ver-

schwand. In diesem Falle war auch im Okular keine Gitterstruktur mehr zu beobachten.

Zur Kontrolle wurde noch ein Gitter mit 10fach grösserer Gitterkonstanten im Mikroskop betrachtet. Hier ergaben sich im Tubus eine Reihe von Beugungsbildern, und es war mit Okular betrachtet nun sowohl bei \perp als seitlicher Beleuchtung die Strukturauflösung praktisch gleich gut.

Es wurde noch folgender Versuch gemacht. Man bestrahlte erst mit L_1 : Die feinen Gitterstriche sind mit gutem Kontrast zu beobachten. Nun wurde das Licht von L_2 mit zunehmender Intensität zugegeben: Der Kontrast nimmt ab, und bald verschwindet das Gitterbild ganz. Damit war der Wert des Auflösungsvermögens auf das Doppelte angewachsen. Es gelingt ferner, die Struktur abwechselungsweise zu erzeugen und zu vernichten, indem man erst schwach mit L_1 bestrahlt, dann L_2 soweit zugibt, bis Struktur verschwindet, und L_1 weiter verstärkt, bis Struktur erscheint, dann L_2 verstärkt und schliesslich durch weitere Steigerung von L_1 Struktur nochmals hervortreten lässt.

Beleuchtete man mit L_1 so schräg, dass das direkte Licht nicht mehr ins Objektiv gelangen konnte und die Abbildung nur durch gebeugte Strahlen erfolgte, entstand ebenfalls ein Strukturbild. Doch erschienen die Gitterstriche vergrößert und in wechselnder Stärke. Es trat die Rauheit der Oberfläche hervor. Auch in diesem Falle konnte die Struktur durch Zumischung des Lichtes von L_2 verdeckt werden.

Qualitativ liess sich die Strukturverdeckung durch zentrales Licht auch in der Weise feststellen, dass man statt L_1 und L_2 eine Mattglasbirne vor das Gitter im Abstand von ca. 6 cm setzte. Bewegte man nun einen Kartonstreifen mit Lichtspalt von ca. 3 mm Breite parallel zu den Gitterstrichen vor der Lampe vorbei, so trat bei seitlicher Stellung Struktur auf, die dann bei Annäherung des Spaltes an die Mitte schwand. Ohne Blende, d. h. bei gemeinsamer zentraler und seitlicher Bestrahlung, war die Struktur verschwunden.

Schliesslich wurde die Gitterabbildung noch in der üblichen mikroskopischen Anordnung mit Kondensorbeleuchtung geprüft. Als Kondensor diente eine Visolett-Lupe, die in einigen cm Abstand, mit der Kugelfläche gegen das Gitter gewendet, angebracht war und die \perp mit dem parallelen Strahlenbündel der Lampe L_2 beleuchtet wurde. Auch hier konnte die Gitterstruktur nur erhalten werden, wenn die mittleren Strahlen durch ein Papierscheibchen ausgeblendet wurden.

Ganz allgemein wird man daher zur Erzielung einer maximalen Auflösung die Schrägbeleuchtung nicht mit einem weit geöffneten Strahlenkegel, sondern möglichst mit einem parallelen Strahlenbündel vornehmen. Zum Schluss sei noch auf das Elektronenmikroskop hingewiesen, für welches die Frage des mittleren Auflösungsvermögens ebenfalls von Interesse ist.

Bern, Physikalisches Institut der Universität.

Versuche zur Messung der thermischen Elektronenemission von Graphit, Silizium und Siliziumkarbid

von A. Braun und G. Busch.

(2. IX. 1946.)

Zusammenfassung. Mit Hilfe einer neuen Methode wird die thermische Elektronenemission aus stäbchenförmigen Körpern von Graphit, Silizium und einkristallinem Siliziumkarbid gemessen. Die Aufheizung der Probekörper geschieht durch Wärmestrahlung in einem Hohlraum, dessen Innenwand als Anode für die emittierten Elektronen dient. Zu diesem Zweck wird ein Hochvakuumofen von etwa 2 cm³ wirksamem Volumen für Temperaturen bis 2000° C bei einer Heizleistung von 1 kW konstruiert. — Die Messungen ergaben in der üblichen Auswertung $J = AT^2 e^{-\frac{\phi}{kT}}$ die folgenden Emissionskonstanten:

	C	Si	
Φ	4,39	3,59	eV
A	15	8	Amp./cm ² grad ²

Bei Siliziumkarbid stösst man auf grundsätzliche Schwierigkeiten, welche die Messung der Elektronenemission aus der reinen Oberfläche verhindern. — Die Theorie der thermischen Elektronenemission aus Halbleitern wird für den Fall erweitert, dass das Elektronengas bereits erheblich entartet ist. Sie liefert die allgemeine Form

$$i_x = \frac{1}{2} AT^2 e^{-\frac{\phi_H - \Delta B}{kT}} q(n_D, T).$$

Die vorliegenden Messungen werden mit dieser Theorie für den Fall verschwindender Aktivierungsenergie $\Delta B = 0$ verglichen und ergeben folgendes Bild:

	C	Si	
Φ_H	4,56	3,8	eV
n_D	$\sim 10^{20}$	$\sim 3 \cdot 10^{19}$	Störstellen/cm ³

I. Einleitung.

Die thermische Elektronenemission der Metalle ist heute theoretisch und experimentell weitgehend abgeklärt. Dagegen ist das Problem der Elektronenemission aus *nichtmetallischen* Elektronenleitern (Halbleiter) noch verhältnismässig wenig systematisch bearbeitet worden, obschon es die Grundlage für die Herstellung von Glüh- und Photokathoden¹⁾ wie auch für den Mechanismus spannungsabhängiger Widerstände bildet²⁾. Das an zweiter Stelle genannte Gebiet hat das Interesse besonders auf das Verhalten von Graphit, Silizium und Siliziumkarbid (SiC) gelenkt, von denen bisher lediglich Graphit untersucht worden ist.

Da die Elektronenemission einer Substanz mit dem Charakter ihrer elektrischen Leitfähigkeit eng gekoppelt ist, erhebt sich die Frage, wie weit sich das Verhalten der oben genannten Stoffe mit demjenigen der Metalle deckt oder sich von diesem unterscheidet.

Siliziumkarbid ist nach Messungen von BUSCH u. a.³⁾ ein Halbleiter, bei dem sich allerdings infolge der verhältnismässig hohen Störstellenkonzentration bereits Entartungserscheinungen des Elektronengases bemerkbar machen. Die Voraussetzungen für die Gültigkeit der WILSONschen Theorie⁴⁾ sind beim SiC nur zum Teil erfüllt. Unter Berücksichtigung der teilweisen Entartung lässt sich diese Theorie jedoch so erweitern⁵⁾, dass das elektrische Verhalten des SiC völlig richtig wiedergegeben wird⁶⁾.

Über die Klassierung des *Siliziums* als Metall oder Halbleiter herrscht noch nicht völlige Klarheit. Zwar bezeichnet VAN ARKEL⁷⁾ Si eindeutig als Nichtmetall. Damit in Übereinstimmung sind auch die Messungen der Intensitätsverteilung im Emissionsspektrum der langwelligen Röntgenstrahlung des Si von O'BRYAN und SKINNER⁸⁾. Nach diesen muss geschlossen werden, dass das Energieband der Valenzelektronen *voll* besetzt ist und daher Si nicht als Metall betrachtet werden kann. Auch nach den ersten Messungen von KÖNIGSBERGER und SCHILLING⁹⁾, sowie der Tatsache, dass

¹⁾ W. SCHOTTKY und H. ROTHE, Handb. d. Exp. Phys. **13/2** (1928); A. REIMAN, Thermionic Emission, Chapman & Hall, London 1934; J. H. DE BOER, Elektronenemission und Adsorptionserscheinungen, J. A. Barth, Leipzig 1937.

²⁾ A. BRAUN und G. BUSCH, H. P. A. **XV** (1942).

³⁾ Siehe G. BUSCH, H. P. A. **XIX**, 167 (1946).

⁴⁾ H. A. WILSON, Proc. Roy. Soc. **133**, 458 (1931); **134**, 277 (1932).

⁵⁾ K. SHIFFRIN, J. of Phys. USSR. **8**, 242 (1944).

⁶⁾ G. BUSCH und H. LABHART, H. P. A. **XIX**, 463 (1946).

⁷⁾ A. E. VAN ARKEL, Reine Metalle, Springer, Berlin 1939.

⁸⁾ H. M. O'BRYAN und H. W. B. SKINNER, Phys. Rev. **45**, 370 (1934).

⁹⁾ J. KÖNIGSBERGER und K. SCHILLING, Ann. **32**, 129 (1910); J. KÖNIGSBERGER, Jahrb. d. Rad. u. Elektron. **11**, 84 (1914).

Kontakte zwischen Si und Metallen hervorragende Gleichrichtereigenschaften besitzen, wäre Si zu den Halbleitern zu zählen. Damit scheinen aber Messungen der elektrischen Leitfähigkeit an Si-Einkristallen von SEEMANN¹⁾, SCHULZE²⁾ und LAUSTER³⁾ in Widerspruch zu stehen. Diese Autoren finden für Temperaturen zwischen dem Siedepunkt des flüssigen Stickstoffs und 700° C eine schwache *Abnahme* der Leitfähigkeit mit steigender Temperatur und schliessen daraus auf *metallische* Leitfähigkeit. Infolge der grossen Schwierigkeit, Si sehr rein und in Form genügend grosser Einkristalle zu beschaffen, dürfen aus ihren Messungen wohl nicht allzuweit gehende Schlüsse bezüglich des Leitungscharakters gezogen werden. Jedenfalls kann aus einem negativen Temperaturkoeffizienten der elektrischen Leitfähigkeit einer Substanz nicht eindeutig ihr metallischer Charakter abgeleitet werden, da entartete Halbleiter dasselbe Verhalten zeigen⁴⁾. Ausserdem stellten MEISSNER und VOIGT⁵⁾ ausdrücklich fest, dass an Si-Einkristallen, die sie bis 1,2° K untersuchten, kein *metallischer* Temperaturkoeffizient gefunden werden konnte. Wie weit die Verhältnisse beim Si durch die Existenz oberflächlicher Sperr- oder Fremdschichten kompliziert werden, ist heute noch fraglich. Sicher ist dagegen, dass solche existieren; denn Widerstände aus körnigem Si zeigen nach eigenen Messungen dieselben Abweichungen vom OHM'schen Gesetz, wie dies z. B. bei SiC bekannt ist.

Leider sind auch im Falle des *Graphits* die Verhältnisse noch recht unsicher. Messungen an Graphit-Einkristallen, und nur diesen darf entscheidende Bedeutung beigemessen werden, liegen wenige vor. Graphit besitzt bekanntlich ein charakteristisches Schichtengitter mit einer ausserordentlich stark ausgeprägten Anisotropie seiner elektrischen und magnetischen Eigenschaften⁶⁾. RYSCHKIEWITZ⁷⁾ untersuchte die Temperaturabhängigkeit der elektrischen Leitfähigkeit in Richtung der Schichten in einem sehr kleinen Temperaturintervall von 0 bis 98° C und fand einen *nicht-linearen* Anstieg des spez. Widerstandes mit der Temperatur. Von DE HAAS und VAN ALPHEN⁸⁾ wurde zwischen 1,15° K und

¹⁾ H. J. SEEMANN, Phys. Zs. **28**, 765 (1927); **29**, 94 (1928); Zs. f. Phys. **61**, 576 (1930).

²⁾ A. SCHULZE, Phys. Zs. **31**, 1062 (1930); Zs. f. tech. Phys. **61**, 578 (1930).

³⁾ F. LAUSTER, Zs. f. Phys. **59**, 83 (1929); **61**, 578 (1930).

⁴⁾ K. SHIFRIN, loc. cit.

⁵⁾ W. MEISSNER und B. VOIGT, Ann. **7**, 761, 892 (1930).

⁶⁾ K. S. KRISHNAN und N. GANGULI, Proc. Roy. Soc. **177**, 168 (1940).

⁷⁾ E. RYSCHKIEWITZ, Zs. f. El.Chem. **29**, 474 (1923).

⁸⁾ W. J. DE HAAS und P. A. VAN ALPHEN, Proc. Amsterdam **34**, 70 (1931).

Zimmertemperatur ebenfalls eine Zunahme des spez. Widerstandes gefunden, während MEISSNER und VOIGT¹⁾ bei 4,22° K ein *Widerstandsminimum* beobachteten. Spätere Messungen von MEISSNER, FRANZ und WESTERHOFF²⁾ bestätigten die Existenz dieses Minimums jedoch nicht mehr. Das Auftreten eines Widerstandsminimums bzw. eines Leitfähigkeitsmaximums bei tiefen Temperaturen würde die Ansicht, dass Graphit ein entarteter Halbleiter ist, stark stützen. Die letzten uns bekannten Messungen an Graphit-Einkristallen stammen von KRISHNAN und GANGULI³⁾. Nach diesen ist die elektrische Leitfähigkeit in Richtung der Schichten ca. 10⁴mal grösser als senkrecht zu diesen. Der Einfluss der Temperatur wurde jedoch nicht untersucht. Es scheint daher, dass auch im Falle des Graphits eine endgültige Klassierung als „zweidimensionales Metall“ verfrüht ist.

Auch optisch wird sich eine Entscheidung schwer herbeiführen lassen, denn alle drei Stoffe zeigen einen charakteristischen, schwarzen „metallischen“ Glanz; die schwarze Modifikation des SiC ist aber eindeutig ein Halbleiter. Es schien daher angebracht, die Möglichkeit offenzulassen, dass es sich sowohl bei Silizium wie auch Graphit um Halbleiter handelt, deren Elektronengas zwar erheblich *entartet* sein kann. In diesem Falle ist aber zu prüfen, wie weit die Gesetze für die thermische Elektronenemission von den bekannten für Metalle bzw. normale Halbleiter abweichen.

II. Thermische Elektronenemission nichtmetallischer Elektronenleiter.

Die Grundgleichung für die ins Vakuum emittierte Stromdichte lautet allgemein für jede Art Elektronenleiter (Metalle und Halbleiter)⁴⁾

$$i_x = \frac{e}{\hbar} \frac{2}{(2\pi)^3} \int_{-\infty}^{+\infty} dk_y \int_{-\infty}^{+\infty} dk_z \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dE}{e^{\frac{E-\zeta}{kT}} + 1} \quad (1)$$

$$E_0 = \frac{\hbar^2}{2m} (k_y^2 + k_z^2)$$

Es bedeuten: e Elektronenladung

\hbar Plancksche Konstante

E Energie des Elektrons

ζ Grenzeenergie der Fermi-Dirac-Verteilung

$k_x k_y k_z$ Komponenten des Wellenzahlvektors im \vec{k} -Raum.

¹⁾ W. MEISSNER und B. VOIGT, Ann. **7**, 761, 892 (1930).

²⁾ W. MEISSNER, H. FRANZ und H. WESTERHOFF, Ann. **13**, 555 (1932).

³⁾ K. S. KRISHNAN und N. GANGULI, Nature **144**, 667 (1939).

⁴⁾ Siehe z. B. H. FRÖHLICH, Elektronentheorie der Metalle, Springer, Berlin 1936.

Die Integration erstreckt sich für k_y und k_z von $-\infty$ bis $+\infty$, während sich als untere Grenze für den Energiebereich der emittierten Elektronen aus der Stetigkeitsbedingung der Wellenfunktionen am Rande des Leiters die Bedingung ergibt

$$E \geq \frac{\hbar^2}{2m} (k_y^2 + k_z^2).$$

Das Integral

$$J = \int_{\frac{\hbar^2}{2m} (k_y^2 + k_z^2)}^{\infty} \frac{dE}{e} \frac{e^{-\frac{E-\zeta}{kT}}}{e^{\frac{E-\zeta}{kT}} + 1}$$

lässt sich leicht exakt durchführen und liefert

$$J = kT \ln \left(1 + e^{-\frac{E_0 - \zeta}{kT}} \right). \quad (2)$$

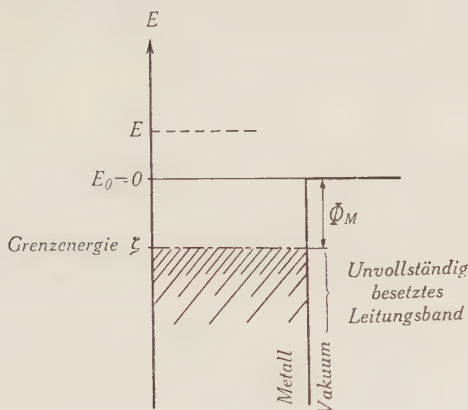


Fig. 1.

Energieschema eines metallischen Leiters.

Nun liegt in allen Fällen die Grenzenergie ζ so weit unterhalb des Potentialrandes des Leiters, dass $\frac{E_0 - \zeta}{kT} \gg 1$ angenommen werden kann. In diesem Fall wird aus (1)

$$i_x = \frac{e}{\hbar} \frac{2}{(2\pi)^3} kT e^{\frac{\zeta}{kT}} \int_{-\infty}^{\infty} dk_y \int_{-\infty}^{\infty} dk_z \cdot e^{-\frac{\hbar^2}{2m kT} (k_y^2 + k_z^2)} \quad (3)$$

was in bekannter Weise integriert zum Ausdruck führt:

$$\underline{i_x = AT^2 e^{\frac{\zeta}{kT}}; \quad A = \frac{e m k^2}{2 \pi^2 \hbar^3}. \quad (4)}$$

Die Gleichung (4) besitzt völlig *allgemeine Gültigkeit* für die thermische Elektronenemission eines Elektronenleiters und kann jedem speziellen Modell dadurch angepasst werden, dass für die Grenzenergie ζ der entsprechende Ausdruck eingeführt wird.

Legt man den Nullpunkt der Energieskala willkürlich an die Stelle $E = E_0 = 0$ und definiert man als *Austrittsarbeit*

$$\Phi_M = -\zeta \quad (5)$$

so erhält man sofort die bekannte LANGMUIR-SCHOTTKYSche Emissionsgleichung für Metalle:

$$i_x = AT^2 e^{-\frac{\Phi_M}{kT}}. \quad (6)$$

Im Falle eines Halbleiters ist die Grenzenergie abhängig vom Modell, welches man zugrundelegt, und ergibt sich aus der Bedingung für das thermische Gleichgewicht zwischen den freien Elektronen, die sich im Leitungsband befinden, und ihrer Konzentration in der elektronenspendenden Energiezone.

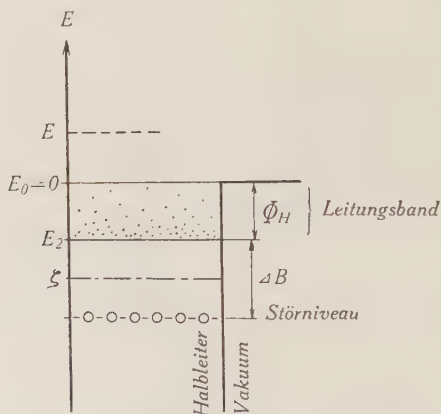


Fig. 2.

Energieschema eines Überschuss-Halbleiters.

Die folgenden Überlegungen gelten für einen *Überschuss*halbleiter, dessen Energieschema in Fig. 2 veranschaulicht ist. Unter der Voraussetzung, dass

$$\mu = \frac{\zeta - E_2}{kT} \leq 1,5 \quad (7)$$

ist, lässt sich für ζ ein geschlossener Ausdruck angeben¹⁾. Die Bedingung (7) bedeutet, dass die Grenzenergie ζ bis knapp über den unteren Rand des Leitungsbandes ansteigen darf, was bereits

¹⁾ G. BUSCH und H. LABHART, loc. cit.

zu einer merklichen Entartung des Elektronengases Anlass gibt. Für $\mu \geq 2$ ist das Elektronengas völlig entartet, wie es in den Metallen der Fall ist. Für die Bestimmung von ζ erhält man die für alle Werte von $\mu \leq 1,5$ mit einem Maximalfehler von 3,5% gültige Gleichung

$$e^u = e^{\frac{\zeta - E_2}{kT}} = \frac{(b - B^*) + [(B^* - b)^2 + 4(\beta B^* - c)]^{1/2}}{2(\beta B^* - c)}. \quad (8)$$

Dabei bedeuten

$$\beta = e^{\frac{\Delta B}{kT}} \quad (9a)$$

ΔB = thermische Aktivierungsenergie,

$$B^* = \frac{T^{3/2}}{n_D} \left(\frac{m^* k}{2^{1/3} \pi \hbar^2} \right)^{3/2} = \frac{D^* T^{3/2}}{n_D}. \quad (9b)$$

n_D ist die Zahl der Elektronenspenderstellen pro cm^3 und m^* die scheinbare Masse der Elektronen im Leitungsband. Die Konstanten b und c rühren von der Entwicklung der Funktion

$$f_{1/2}(\mu) = \frac{1}{2} \int_0^\infty \frac{\chi^{1/2} d\chi}{e^{\chi - \mu} + 1} = \frac{1}{2} e^\mu \int_0^\infty \frac{\chi^{1/2} d\chi}{e^\chi + e^\mu} \quad (9)$$

her, wobei $\chi = \frac{E - E_2}{kT}$ und $\mu = \frac{\zeta - E_2}{kT}$ gesetzt worden ist.

Wie BUSCH und LABHART¹⁾ gezeigt haben, lässt sich dieses Integral als Funktion des Parameters μ innerhalb des durch (7) gegebenen Bereiches durch die Entwicklung darstellen

$$J = \frac{\sqrt{\pi}}{4} e^\mu \frac{1}{1 + b e^\mu + c e^{2\mu}}. \quad (10)$$

Die Entwicklungskoeffizienten b und c haben folgende Zahlenwerte:

$$b = 0,36965, \quad c = -0,0279.$$

Durch Einsetzen von (8) in (4) ergibt sich unter Berücksichtigung der Beziehungen (9a) und (9b)

$$i_x = \frac{1}{2} A T^2 e^{\frac{E_2 - \Delta B}{kT}} \cdot \varrho(n_D, T) \quad (11a)$$

mit

$$\varrho(n_D, T) =$$

$$\frac{\left[(D^* T^{3/2} - b n_D)^2 + 4 n_D e^{\frac{\Delta B}{kT}} \left(D^* T^{3/2} - c n_D e^{-\frac{\Delta B}{kT}} \right) \right]^{1/2}}{D^* T^{3/2} - c n_D e^{-\frac{\Delta B}{kT}}} - (D^* T^{3/2} - b n_D) \quad (11b)$$

¹⁾ G. BUSCH und H. LABHART, loc. cit.

Definiert man nun als *Austrittsarbeit* der Elektronen des Halbleiters

$$\underline{\Phi_H = -E_2} \quad (12)$$

d. h. also den energetischen Abstand des unteren Randes des Leitungsbandes vom Potentialrand des Halbleiters, so wird

$$i_x = \frac{1}{2} A T^2 e^{-\frac{\Phi_H - \Delta B}{kT}} \cdot \varrho(n_D, T). \quad (13)$$

Die Gleichung (13) besitzt für Überschusshalbleiter bis an die Grenze der völligen Entartung des Elektronengases Gültigkeit und soll im folgenden für verschiedene Grenzfälle diskutiert werden.

Diskussion.

A) *Kleine Störstellenzahl* n_D , so dass im ganzen für die Messung thermischer Emissionsströme bedeutsamen Temperaturgebiet, d. h. $800^\circ \leq T \leq 2000^\circ \text{ K}$, die Beziehung gilt:

$$\underline{D^* T^{3/2} \gg b n_D} > |c| n_D e^{-\frac{\Delta B}{kT}}. \quad (14)$$

Setzt man als untere Grenze der Messtemperatur etwa $T_{\min} = 800^\circ \text{ K}$ und identifiziert man die scheinbare Elektronenmasse m^* mit der Ruhemasse m_0 , so ist

$$D = D_0 = 4,75 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3} \text{ grad}^{-3/2} \text{ und} \\ n_D \ll \frac{D_0}{b} \cdot T_{\min}^{3/2} \cong 3 \cdot 10^{20} \text{ pro cm}^3. \quad (14a)$$

Unter dieser, für die meisten normalen Halbleiter gültigen Beziehung wird

$$\varrho(n_D, T) = \left[1 + \frac{4 n_D}{D_0 T^{3/2}} e^{\frac{\Delta B}{kT}} \right]^{1/2} - 1. \quad (15)$$

1. $\Delta B \gg kT$: Hohe Aktivierungsenergie bzw. tiefe Temperaturen.

Es sei $\frac{\Delta B}{kT}$ so gross, dass

$$4 n_D e^{\frac{\Delta B}{kT}} \gg D_0 T^{3/2}$$

d. h. mit der Hauptbedingung $D_0 T^{3/2} \gg b n_D$

$$e^{\frac{\Delta B}{kT}} \gg \frac{b}{4} = 0,09.$$

Dies ist sicher der Fall, wenn etwa $\Delta B \geq 2kT$ ist. Soll diese Bedingung noch für die höchsten praktisch bedeutsamen Temperaturen $T \leq 2000^\circ \text{K}$ gelten, so muss

$$\underline{\Delta B \geq 0,75 \text{ eV}}$$

sein. Dies ist bei einer grossen Zahl von Halbleitern der Fall. Der Ausdruck (15) vereinfacht sich dadurch weiter und liefert:

$$\varrho(n_D, T) = 2 \left(\frac{n_D}{D_0} \right)^{1/2} T^{-3/4} e^{\frac{\Delta B}{2kT}}$$

und zusammen mit der Grundgleichung (13)

$$i_x = \frac{A}{D_0^{1/2}} \cdot n_D^{1/2} T^{5/4} e^{-\frac{\Phi_H + \frac{\Delta B}{2}}{kT}}. \quad (16)$$

Führt man für A und D_0 noch die entsprechenden Ausdrücke ein, so findet man

$$i_x = e \left(\frac{mk^5}{8\pi h^6} \right)^{1/4} n_D^{1/2} T^{5/4} e^{-\frac{\Phi_H + \frac{\Delta B}{2}}{kT}}. \quad (17)$$

In dieser Form wurde das Emissionsgesetz erstmals von SCHOTTKY¹⁾ angegeben und gilt für den Fall des *nichtentarteten* Elektronengases, d. h. es befindet sich nur ein kleiner Bruchteil der verfügbaren Elektronen im Leitungsband. Die Stromdichte i_x steigt also bei konstanter Temperatur genau wie die elektrische Leitfähigkeit mit der Quadratwurzel aus der Störstellenkonzentration n_D .

2. $\Delta B \ll kT$: Kleine Aktivierungsenergie bzw. hohe Temperaturen.

Da jetzt $e^{\frac{\Delta B}{kT}} \approx 1$ wird, ist auch $D_0 T^{3/2} \gg 4 n_D e^{\frac{\Delta B}{kT}}$, d. h. Gleichung (15) geht durch Entwicklung der Wurzel über in

$$\varrho(n_D, T) \cong \left[1 + 2 \frac{n_D}{D_0 T^{3/2}} e^{\frac{\Delta B}{kT}} \right] - 1 = 2 \frac{n_D}{D_0 T^{3/2}} e^{\frac{\Delta B}{kT}}$$

und damit

$$i_x = \frac{A}{D_0} T^{1/2} n_D e^{-\frac{\Phi_H}{kT}} = e n_D \left(\frac{k}{2\pi m} \right)^{1/2} T^{1/2} e^{-\frac{\Phi_H}{kT}}. \quad (18)$$

Dieses Ergebnis ist identisch mit der klassischen Formel von

¹⁾ W. SCHOTTKY, Naturw. **23**, 116 (1935).

RICHARDSON, welche unter der Annahme gefunden wurde, dass das Elektronengas durch eine Maxwell-Boltzmannsche Verteilungsfunktion beschrieben werden kann. Die Zahl der Elektronen im Leitungsband ist in (19) identisch mit der Zahl der Spenderstellen, welche je ein Elektron abgeben können. Es befinden sich also alle verfügbaren Elektronen im Leitungsband, und ihre Zahl ist demzufolge nicht mehr von der Grösse der Aktivierungsenergie abhängig. Infolge der kleinen Störstellenzahl ($n_D < 3 \cdot 10^{18}$ pro cm^3) ist das Elektronengas auch in diesem Falle *nicht* entartet.

B) *Grosse Störstellenzahl* n_D , so dass

$$b n_D \geq D_0 T^{3/2} \quad (19)$$

ist. Dies bedeutet bei einer oberen Grenze der Messtemperatur $T_{\max} \sim 2000^\circ \text{K}$

$$n_D \geq 1,2 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}. \quad (19a)$$

Störstellenkonzentrationen von dieser Grössenordnung sind tatsächlich z. B. in der schwarzen Modifikation des SiC, noch grössere z. B. in PbS und PbSe vorhanden.

1. $\Delta B \gg kT$.

In diesem Falle sind $b n_D \geq D_0 T^{3/2} \gg |c| n_D e^{-\frac{\Delta B}{kT}}$, d. h. es ist

$$e^{-\frac{\Delta B}{kT}} \ll \frac{b}{|c|} = 1,42,$$

und somit etwa $\Delta B \geq 4kT$. Für eine Maximaltemperatur $T_{\max} \sim 2000^\circ \text{K}$ muss also $\Delta B \geq 0,7 \text{ eV}$ werden. Dieser Fall ist praktisch selten verwirklicht, da hohe Störstellenkonzentration und hohe thermische Anregungsenergie sich im allgemeinen gegenseitig ausschliessen. Für SiC treffen diese Voraussetzungen jedoch angenähert zu. Unter diesen Bedingungen ist

$$q(n_D, T) = \frac{\left[(D_0 T^{3/2} - b n_D)^2 + 4 n_D e^{\frac{\Delta B}{kT}} D_0 T^{3/2} \right]^{1/2}}{D_0 T^{3/2}} - (D_0 T^{3/2} - b n_D).$$

Für hinreichend tiefe Temperaturen ($b n_D \gg D_0 T^{3/2}$) lässt sich dieser Ausdruck noch weiter vereinfachen und liefert

$$i_x = \frac{A}{D_0^{1/2}} n_D^{1/2} T^{5/4} e^{-\frac{\phi_H + \frac{\Delta B}{2}}{kT}} [(1 + q^2)^{1/2} + q] \quad (20)$$

mit

$$q = \frac{b^2 n_D}{4 D_0 T^{3/2}} e^{-\frac{\Delta B}{kT}}.$$

Die SCHOTTKYSche Formel (17) erfährt somit infolge der *beginnenden* Entartung eine Korrektur, die bei bekannter Störstellenkonzentration n_D und Aktivierungsenergie ΔB zahlenmässig angegeben werden kann. Sie wirkt sich also im Sinn einer Erhöhung der Emission gegenüber dem nicht entarteten Halbleiter aus. Die Elektronen des Leitungsbandes benehmen sich zwar noch angenähert wie ein Gas mit Maxwell-Statistik. Infolge der grossen Elektronenkonzentration im Störniveau wird jedoch die Grenzenergie ζ erhöht und das Gleichgewicht zugunsten der Leitungselektronen verschoben.

2. $\Delta B \ll kT$.

Grenzfall: $\Delta B = 0$.

Das Störniveau fällt mit dem unteren Rand des Leitungsbandes zusammen. Infolge dieser Tatsache und der sehr hohen Konzentration der Störstellen entartet das Elektronengas so stark, dass unsere Näherungsmethode versagt. Zur Behandlung dieses Falles ist nur das von SHIFRIN¹⁾ entwickelte graphische Verfahren zur Ermittlung der Grenzenergie ζ zuständig. Dieses besteht darin, dass die transzendente Grundgleichung des Halbleiterproblems für den Fall $\Delta B = 0$, nämlich

$$\frac{A}{1 + e^\mu} = \frac{1}{2} f_{1/2}(\mu) \quad (21)$$

graphisch gelöst wird. Die Funktion $f_{1/2}(\mu)$ ist durch die in (9) angegebene Integraldarstellung bestimmt. Die Grösse A hängt von n_D und T in folgender Weise ab:

$$A = \frac{1}{\pi^2} \left(\frac{\hbar^2}{2 m^* k T} \right)^{3/2} \frac{n_D}{T^{3/2}}. \quad (21a)$$

Tabelle 1.

$T^\circ \text{ K} \backslash n_D$	$3 \cdot 10^{20}$	$3 \cdot 10^{21}$	$3 \cdot 10^{22}$
800	0,50	2,15	3,80
1000	0,25	1,90	3,50
1200	0,05	1,70	3,35
1400	-0,15	1,55	3,20
1600	-0,35	1,40	3,05
1800	-0,45	1,25	2,90
2000	-0,65	1,15	2,80
2200	-0,75	1,05	2,70
2400	-0,85	0,95	2,60

¹⁾ K. SHIFRIN, loc. cit.

Zu jedem Wert von n_D kann aus (21) μ als Funktion von T graphisch ermittelt werden. Das Ergebnis dieser Auswertung ist in Tabelle 1 zusammengestellt.

Mit diesen Werten von μ ergibt sich die Funktion

$$\varrho(n_D, T) = 2 e^\mu \quad (22)$$

wie sich durch Vergleich von (4) und (11a) sofort einsehen lässt. Der Verlauf von $\varrho(n_D, T)$ als Funktion der reziproken absoluten Temperatur ist in Fig. 3 dargestellt. Aus dieser Darstellung geht

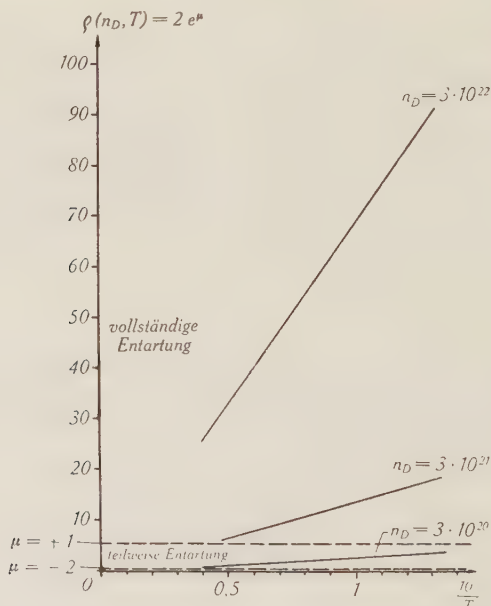


Fig. 3.

Die Funktion $\varrho(n_D, T)$ für $\Delta B = 0$.

hervor, dass $\varrho(n_D, T)$ praktisch linear mit $1/T$ verläuft und mit genügender Näherung durch

$$\varrho(n_D, T) \cong \frac{C(n_D)}{T} \quad (23)$$

wiedergegeben werden kann. Die Konstante $C(n_D)$ hängt nur noch von der Störstellenkonzentration n_D ab und ist grösser als 1; sie kann für jeden konkreten Fall graphisch ermittelt werden.

Mit (23) erhält man aus (11a) die Emissionsgleichung für stark entartete Halbleiter:

$$i_x = \frac{C(n_D)}{2} A T e^{-\frac{\phi_H}{kT}}. \quad (24)$$

Es zeigt sich also auch hier, wie für die elektrische Leitfähigkeit, dass ein entarteter Halbleiter physikalisch von einem Metall verschieden ist, dass sich aber eine Unterscheidung auf experimentellem Wege kaum durchführen lässt. Es ist daher zum vornherein zu erwarten, dass sich Substanzen wie Silizium und Graphit, die bei Zimmertemperaturen Leitfähigkeiten von 10^3 – $10^4 \text{ } \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ zeigen, bezüglich ihrer Elektronenemission praktisch wie Metalle verhalten. Beim Siliziumkarbid müssten sich dagegen beträchtliche Abweichungen bemerkbar machen, da hier die Leitfähigkeiten und damit der Entartungsgrad in weiten Grenzen variieren.

III. Messmethode.

Von den in der vorliegenden Arbeit untersuchten Substanzen Graphit, Silizium und Siliziumkarbid wurde die Elektronenemission bisher nur an Graphit gemessen, und zwar durch Messung der Emission glühender Kohlefäden. Die allgemeine Methode solcher Messungen besteht darin, dass von der zu untersuchenden Substanz ein drahtförmiger Körper hergestellt und durch direkten Stromdurchgang erhitzt wird. Sie ist im vorliegenden Fall nicht anwendbar, da sich aus den genannten Substanzen keine Drähte herstellen lassen. Prinzipiell bleiben nun für die Aufheizung der Probekörper zwei Wege offen: entweder durch Anwendung von Wirbelströmen oder durch Strahlungsheizung in einem Hohlraum. In Anbetracht der geringen Leitfähigkeiten und der kleinen Dimensionen der vorliegenden Probekörper ist die erste Methode unzweckmässig. Die zweite Methode ist nicht nur technisch einfacher, sondern bietet überdies den Vorteil einer einfachen und zuverlässigen, optischen Temperaturmessung. Infolge des Strahlungsgleichgewichtes im Hohlraum ist die Temperatur des Probekörpers gleich der Hohlraumtemperatur, dessen Strahlung durch eine kleine Öffnung beobachtet praktisch als vollkommen schwarz gelten kann. Dadurch wird die Kenntnis des Absorptionsvermögens des Probekörpers unnötig. Dies ist besonders bei SiC wesentlich, dessen Absorptionsvermögen stark von der Temperatur abhängt¹⁾. Die Innenwand des Hohlraums übernimmt bei dieser Anordnung

¹⁾ O. WEIGEL, Gött. Nachrichten 299 (1915).

gleichzeitig die Funktion der Anode. Ihre Elektronenemission kann die Messung in keiner Weise stören, denn diese Elektronen können zufolge des elektrischen Feldes die Anode nicht verlassen. Es ist lediglich darauf Bedacht zu nehmen, dass eine allfällige Emission positiver Ionen aus der Anode bedeutend hinter der Elektronenemission der Kathode zurückbleibt.

Zur Messung der Emissionsströme wurde ein Gleichstromverstärker verwendet, welcher Emissionsmessungen bei verhältnismässig tiefen Temperaturen zulässt. Dies ist daher bedeutsam, weil die Schmelztemperatur des Siliziums bei 1440°C liegt und bei Siliziumkarbid bei hohen Temperaturen mit beginnender Dissoziation zu rechnen ist.

IV. Apparatur.

1. Der Hochvakuumofen.

Konstruktion.

Die hier gewählte Methode der Emissionsmessung bringt es mit sich, dass die Probekörper im Ofenhohlraum an einem die Messungen störenden Halter befestigt werden müssen. Diese Bestandteile erhalten nahezu die Temperatur des Probekörpers und emittieren dadurch in der Regel auch selbst merklich, was eventuell zu jeder Messung noch eine „Leermessung“ notwendig machen kann. Man sucht daher mit Vorteil die Befestigungsteile möglichst klein zu halten. Aus diesem Grund wurde für den Hohlraum die Form eines vertikal stehenden Rohres gewählt, welche gestattet, den Probekörper an einem dünnen Wolframdraht aufzuhängen und die Einführung wie Entfernung des Körpers aus dem Hohlraum durch eine einfache Hebevorrichtung gestattet. Auf diese Weise konnten die störenden Emissionsströme unter 1°_{00} des Gesamtstromes gehalten werden, so dass keine Differenzmessungen notwendig wurden.

Die Probekörper besitzen eine Grösse von $10\text{--}20\text{ mm}^3$ in Stäbchenform von $6\text{--}10\text{ mm}$ Länge. Dementsprechend wurde für den Ofenraum ein Graphitrohr von ca. 60 mm wirksamer Länge (90 mm totaler Länge) und 8 mm Innendurchmesser gewählt. Bei einer Wandstärke von 1 mm wies das Rohr einen elektrischen Widerstand von $\frac{3}{100}\text{ Ohm}$ auf. Nahe den Rohrenden wurden ausserdem 2 Nuten von je 2 mm Breite und etwa $\frac{2}{10}\text{ mm}$ Tiefe eingedreht, welche in diesen Zonen eine erhöhte Heizung bewirken. Dadurch wird der Temperaturabfall gegen die Rohrenden, der durch die Wärmeableitung nach den gekühlten Flanschen hin

bewirkt wird, etwas reduziert. Diese Einrichtung wird besonders bei höheren Temperaturen wirksam, bei denen die durch Strahlung abgegebene Leistung ins Gewicht zu fallen beginnt. Der Ofen befindet sich in einem Glasrezipienten, der unter Zwischenschaltung einer Kühlfalle an eine leistungsfähige Hg-Diffusionspumpe angeschlossen ist.

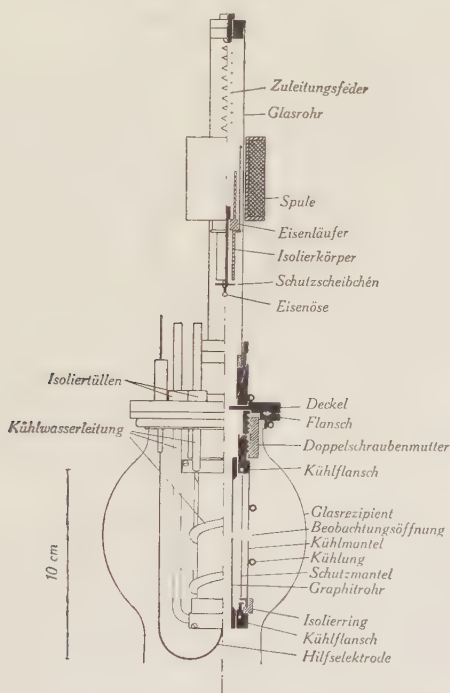


Fig. 4.
Hochvakuumofen.

Für die Messungen wurde angenommen, dass die Temperaturen bis zu 2000°C erfordern. Unter Annahme dieser Höchsttemperatur und annähernd schwarzer Strahlung des Ofens ergibt sich nach dem Stefan-Boltzmannschen Strahlungsgesetz eine Strahlungsleistung L_0 von rund 3 kW. Der Ofen muss somit in einen wassergekühlten Mantel eingeschlossen werden, welcher den Glasrezipienten schützt.

Um die durch Strahlung abgegebene und somit für die Aufrechterhaltung der Temperatur notwendige Leistung zu reduzieren, wird zwischen Ofen und Kühlmantel ein praktisch wärmeisoliert eingebautes Metallrohr untergebracht. Dieses wird durch die

Strahlung geheizt und gibt dadurch seinerseits wieder Strahlung ab, die einen Teil der Strahlungsleistung dem Ofen zurückgibt. Die Wirkung dieser Abschirmung lässt sich sofort abschätzen.

Die Radien des Graphitrohres R , des Schutzmantels S und des Kühlmantels K seien bzw. mit r_1 , r_2 und r_3 bezeichnet (Fig. 5). Zur Vereinfachung der Rechnungen werden folgende Annahmen

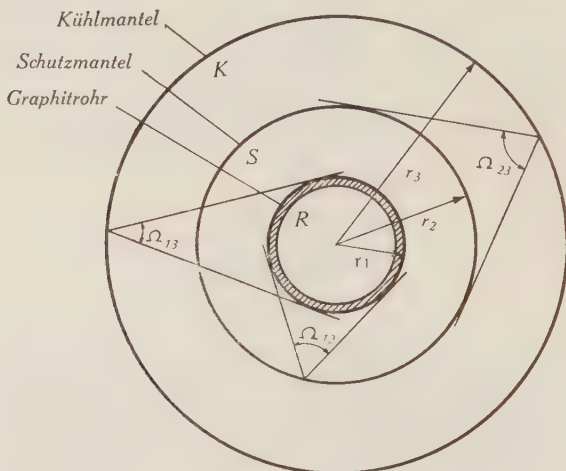


Fig. 5.

Zur Herleitung der Strahlungsabschirmung.

gemacht: Die Radien seien so gewählt, dass für ihre Verhältnisse gilt $r_1/r_2 = r_2/r_3$. Dadurch werden die Raumwinkel $\Omega_{12} = \Omega_{23} = \Omega$, und für Ω_{13} wird Ω_0 gesetzt. Die Absorptionsvermögen seien $A_1 = 1$, $A_2 = A_3 = A$, und die Strahlungskonstante σ wird durch den Ausdruck $\sigma = \sigma'/2\pi l$ ersetzt, wo l die wirksame Rohrlänge bedeutet. Die auf den Kühlmantel übertragene Leistung *ohne* den Schutzmantel ist dann¹⁾

$$L_0 = \frac{\sigma' A}{A + \Omega_0(1 - A)} (r_1 T_1^4 - r_3 T_3^4)$$

¹⁾ Zur Ableitung des zwischen den verschiedenen konzentrischen Rohren des Ofens stattfindenden Energieaustausches wird die Strahlungsbilanz zwischen 2 konzentrischen Rohren der Temperaturen T_1 und T_2 und den Absorptionsvermögen A_1 und A_2 betrachtet. Ihre Oberflächen seien F_1 und F_2 und der Raumwinkel des inneren Rohres von der Oberfläche des äusseren her gesehen sei $2\pi\Omega_{12}$. Die von den beiden Oberflächen in den Zwischenraum ausgestrahlten Energien sind nach dem Stefan-Boltzmannschen Gesetz $L_1^0 = \sigma A_1 F_1 T_1^4$ und $L_2^0 = \sigma A_2 F_2 T_2^4$.

Von der Energie L_1^0 wird der Betrag $A_2 L_1^0$ an der zweiten Oberfläche absorbiert und der Betrag $(1 - A_2) L_1^0$ diffus reflektiert. Von den an den Oberflächen stattfindenden Reflexionen wird angenommen, dass sie wie die schwarze Strahlung das

mit Schutzmantel dagegen

$$L = \frac{\sigma' A}{A + \Omega(1 - A)} (r_1 T_1^4 - r_2 T_2^4)$$

$$L = \frac{\sigma' A}{1 + \Omega(1 - A)} (r_2 T_2^4 - r_3 T_3^4).$$

Für die 3 Strahlungsleistungen gilt sicher

$$r_3 T_3^4 \ll r_2 T_2^4 < r_1 T_1^4$$

cos-Gesetz erfüllen. Dann fällt der Teil $\Omega_{12}(1 - A_2)L_0^1$ auf die erste Oberfläche zurück, von der wiederum der Teil $(1 - A_1)\Omega_{12}(1 - A_2)L_0^1$ diffus reflektiert wird und zusammen mit dem restlich an der zweiten Oberfläche reflektierten Teil $(1 - \Omega_{12})(1 - A_2)L_0^1$ wiederum zur zweiten Oberfläche gelangt, nämlich der Betrag

$$\begin{aligned} L_1^1 &= \Omega_{12}(1 - A_1)(1 - A_2)L_0^1 + (1 - \Omega_{12})(1 - A_2)L_0^1 \\ &= (1 - \Omega_{12}A_1)(1 - A_2)L_0^1 = \alpha_{12}L_0^1. \end{aligned}$$

Nach der zweiten Rückkehr von der ersten Oberfläche fällt auf die zweite Oberfläche der Betrag

$$L_2^1 = \alpha_{12}^2 L_0^1$$

und nach der n -ten Rückkehr der Betrag $L_n^1 = \alpha_{12}^n L_0^1$.

Von der zweiten Oberfläche wird zuerst die Energie $A_2 L_0^1$ absorbiert, nach der ersten Rückkehr der Betrag $A_2 L_1^1$, nach der n -ten Rückkehr der Betrag $A_2 L_n^1$. Somit wird der gesamte an der zweiten Oberfläche absorbierte Betrag L_a^2 :

$$L_a^2 = A_2 \sum_{n=0}^{\infty} L_n^1 = A_2 L_0^1 \sum_{n=0}^{\infty} \alpha_{12}^n = \frac{A_2 L_0^1}{1 - \alpha_{12}}.$$

Um ihre gesamte *Emission* zu finden hat man gleicherweise zu verfahren. Von der ausgestrahlten Leistung L_0^2 gelangt der Teil $\Omega_{12}L_0^2$ auf die erste Oberfläche, und der Teil $(1 - A_1)\Omega_{12}L_0^2$ wird von dieser diffus reflektiert. Er fällt zusammen mit dem Teil $(1 - \Omega_{12})L_0^2$ wieder auf die zweite Oberfläche zurück, von welcher dann der Betrag

$$\begin{aligned} L_1^2 &= (1 - A_2) [(1 - A_1)\Omega_{12}L_0^2 + (1 - \Omega_{12})L_0^2] \\ &= (1 - \Omega_{12}A_1)(1 - A_2)L_0^2 = \alpha_{12}L_0^2 \end{aligned}$$

diffus reflektiert wird. Von der ersten Oberfläche werden somit nacheinander die Beträge $A_1\Omega_{12}L_0^2$, $A_1\Omega_{12}L_1^2$, ..., $A_1\Omega_{12}L_n^2$, ... absorbiert, so dass sich als gesamter von der zweiten Oberfläche emittierter Betrag ergibt:

$$L_e^2 = \Omega_{12}A_1 \sum_{n=0}^{\infty} L_n^2 = \Omega_{12}A_1 L_0^2 \sum_{n=0}^{\infty} \alpha_{12}^n = \frac{\Omega_{12}A_1 L_0^2}{1 - \alpha_{12}}.$$

Hieraus errechnet sich sofort der gesamte der zweiten Oberfläche zufließende Energiebetrag zu

$$L = L_a^2 - L_e^2 = \frac{\sigma A_1 A_2}{1 - \alpha_{12}} (F_1 T_1^4 - F_2 T_2^4)$$

und mit $F_i = 2\pi r_i l$ und $2\pi l\sigma = \sigma'$ wird

$$L = \frac{\sigma' A_1 A_2}{A_2 + \Omega_{12}A_1(1 - A_2)} (r_1 T_1^4 - r_2 T_2^4).$$

so dass mit guter Näherung $r_3 T_3^4 = 0$ gesetzt werden darf. Dadurch wird

$$L_0 = \frac{\sigma' A}{A + \Omega_0 (1 - A)} r_1 T_1^4$$

und durch Addition der Gleichungen für L

$$L = \frac{1}{2} \frac{\sigma' A}{A + \Omega (1 - A)} \left[r_1 T_1^4 - \frac{1 - A}{1 + \Omega (1 - A)} r_2 T_2^4 \right] < \frac{1}{2} L_0.$$

Die letzte Folgerung ergibt sich sofort daraus, dass $\Omega_0 < \Omega$ und der zweite Ausdruck in der Klammer immer positiv ist. Die Strahlungsleistung wird somit durch den Schutzmantel bereits auf mehr als die Hälfte reduziert. Festgestellt wurde am fertigen Ofen bei einem Kühlwasserdurchfluss von 6 cm³/sec eine Temperaturerhöhung des Kühlwassers von 35°, was einer Leistung von rund 1 kW entspricht.

Aus der Differenz der Gleichungen für L ergibt sich ausserdem die Temperatur T_2 des Schutzmantels zu

$$T_2 = \sqrt[4]{\frac{r_1}{r_2} \frac{1 + \Omega (1 - A)}{2 [1 + \Omega (1 - A)] - (1 - A)}} \cdot T_1$$

was unter den oben erwähnten Annahmen und mit $r_1 = 4$ mm, $r_3 = 13$ mm die Temperatur $T_2 = 0,77 T_1$ ergibt. Für die Ofentemperatur von 2000° C ist danach eine Manteltemperatur von etwa 1480° C zu erwarten. Es muss somit ein schwerschmelzbares Metall verwendet werden. Um die obere Grenze der erreichbaren Temperatur nicht zu knapp festzusetzen, wurde als Mantelmaterial Molybdänblech verwendet. Der daraus gefertigte Zylinder wurde so geformt, dass er nur an 9 Punkten leicht die Metallteile des Kühlmantels berührt, so dass praktisch keine Wärmeableitung stattfinden kann.

Einige Konstruktionsdetails.

Zur Sicherung eines guten Kontaktes der Stromzuführungen des Graphitrohres werden dessen Enden galvanisch verkupfert und in einem wassergekühlten Klemmflansch aus massivem Kupfer eingespannt. Die beiden Flanschen sind durch den Kühlmantel und einen Isolerring aus Kunstharz (Cibanit) zu einem stabilen und gut zentrierten System zusammengebaut. Das Kühlwasser wird durch vier Kupferröhrchen zugeführt, welche mittels vier Isoliertüllen durch den geerdeten Abschlussdeckel geführt werden. Diese Durchführungen verhindern das Verdrehen des Systems gegenüber dem Deckel. Der Ofen wurde daher an diesem mittels

einer Doppelschraubenmutter mit Rechts- und Linksgewinde aus Kunstharz aufgeschraubt. Sämtliche Isolierteile aus Kunstharz sind so in die gekühlten Teile eingefügt, dass sie von diesen vor der Wärmestrahlung des Ofens vollkommen geschützt sind. Sie stellen somit kein Hindernis für die Erreichung hoher Temperaturen und hoher Vakua dar.

Der Temperaturfehler.

Die durch die Rohrenden und die zur Temperaturmessung angebrachte Bohrung von 1 mm Durchmesser bedingten Öffnungen des Hohlraumes gestatten dem Probekörper, einen Teil seiner Wärmestrahlung an den Aussenraum abzugeben, so dass im Strahlungsgleichgewicht die Temperatur des Probekörpers etwas tiefer liegt als die Hohlraumtemperatur. Dieser Fehler lässt sich in folgender Weise leicht abschätzen:

Die Hohlraumtemperatur sei T , diejenige des Probekörpers liege um den Betrag ΔT tiefer und der Öffnungswinkel der Öffnungen sei $4\pi\Omega$. Dann ist für einen schwarzen Probekörper unter der berechtigten Annahme $\Omega \ll 1$

$$T^4 - (T - \Delta T)^4 = \Omega (T - \Delta T)^4.$$

Werden kleine Grössen zweiter und höherer Ordnung vernachlässigt, so wird sofort

$$3 \Delta T \cdot T^3 = \Omega T^4$$

und somit

$$\Delta T = \frac{\Omega}{3} T.$$

Bei den angegebenen Daten des Ofens wird $\Omega = 1/100$ und somit bei 2100°K $\Delta T = 7^\circ$, bei 1500°K $\Delta T = 5^\circ$. Es ist jedoch zu berücksichtigen, dass bei abnehmender Temperatur die Temperaturverteilung in der Längsrichtung des Rohres an Homogenität abnimmt, was einem allmählichen Anwachsen des Öffnungswinkels gleichkommt. Tatsächlich steigt dieser im Messbereich bis gegen den doppelten Wert an, so dass ΔT auf etwa 8° ansteigt. Das bedeutet, dass der Fehler im ganzen Messbereich innerhalb $2-3^\circ$ konstant ist und somit in den übrigen Fehlern verschwindet.

Entgasung des Ofens.

Ein neu angefertigtes Graphitrohr ist zunächst für Messzwecke nicht brauchbar, da der Graphit noch zuviel Fremdsubstanzen enthält, die erst beim Erhitzen allmählich entweichen. Eine Hilfs-elektrode, die von unten in den Ofenhohlraum hineinragt, gestattet

eine leichte Kontrolle des Entgasungszustandes, da ein Teil der entweichenden Gase als positive Ionen den Graphit verlassen. Dieser Ionenstrom ist anfangs sehr hoch, sinkt aber relativ rasch ab, so dass der ganze Entgasungsprozess schnell durchgeführt ist. Die Elektronenemission der Kontrollelektrode wirkt nicht wesentlich störend, weil deren Temperatur durch höhere Wärmeableitung wesentlich tiefer liegt als die des Ofens. Ihre Emission ist im Verhältnis zu den unter gleichen Bedingungen auftretenden Meßströmen sehr klein. Dies gestattet eine Kontrolle der Emission positiver Ionen, bis diese hinter die Elektronenemission der Hilfelektrode zurücktritt und für die Messungen bedeutungslos wird.

Ist das Graphitrohr einmal gut entgast worden, so nimmt es bei späterem Luftzutritt in kaltem Zustand, z. B. beim Wechseln der Probekörper, nur noch sehr geringe Gasmengen auf, welche den Graphit beim Heizen rasch wieder verlassen.

Die Energiequelle.

Der Strom für die Heizung des Ofens wurde über einen Transformator dem Netz entnommen, dessen Spannung allerdings häufige Schwankungen bis zu 4%, seltener bis gegen 8% aufweist. Sie konnten durch einen mechanischen Spannungsregler auf etwa 1–2% reduziert werden¹⁾. Die dadurch hervorgerufenen Temperaturschwankungen des Ofens sind dann nur noch etwa 2,5–5‰ oder bei 2000° K 5–10°, was den Anforderungen genügt. Der Transformator trägt sekundär eine 9-Volt-Wicklung, welche durch ein geerdetes Metallgehäuse elektrostatisch abgeschirmt ist, um eine kapazitive Übertragung der Netzwechselspannung auf den Gleichstromverstärker zu verhindern. Die einem stabilisierten Netzgerät entnommene feste Anodenspannung wird der oberen Elektrode des Graphitrohres zugeführt, wodurch auch die kapazitive Übertragung der Heizspannung völlig unterdrückt wird.

Hebevorrichtung und Aufhängung.

Genau in der Verlängerung der Ofenachse ist auf dem Abschlussdeckel ein vertikales Glasrohr aufgesetzt, welches die Aufhänge- und Hebevorrichtung enthält. In dieses Glasrohr ist ein rohrförmiger Läufer aus Eisen so eingepasst, dass er darin mit nur sehr geringem Spiel leicht gleiten kann. Darin sitzt ein Isolier-

¹⁾ Der Spannungsregler wurde uns in freundlicher Weise von der Maschinenfabrik Oerlikon, Zürich, zur Verfügung gestellt, wofür wir an dieser Stelle bestens danken.

körper aus Kunstharz, in welchen die Durchführung für den Emissionsstrom eingesetzt ist. Der Isolator ist so geformt, dass zwischen Durchführung und geerdetem Abschlussdeckel ein grosser Oberflächenkriechweg (etwa 50 mm) entsteht, der eine genügende Isolation gegen Erde sicherstellt. Dies ist notwendig, weil der parallel liegende Gitterwiderstand des Verstärkers einen grössten Wert von 10^9 Ohm aufweist. Die Stromdurchführung trägt an ihrem Ende eine feine Eisenöse. In diese wird der Wolframdraht eingehängt, an dessen unterem Ende der Probekörper befestigt wird.

Diese Befestigung bereitet bei Graphit und Siliziumkarbid keine wesentlichen Schwierigkeiten. Diese Probekörper wurden einfach mit zwei seitlichen Schlitzten versehen, in die eine Tantalklammer zangenartig eingreift. Diese behält ihre Elastizität bis über 2000°C und gestattet so durch einfaches Einhängen in den hakenförmig gekrümmten Wolframdraht ein leichtes Befestigen und Wechseln der Probekörper. Bedeutend schwieriger ist das Befestigen des Siliziums. Dieses reagiert bei hohen Temperaturen praktisch mit allen Schwermetallen, was jede metallische Halterung dieser Substanz unmöglich macht. Als beste Lösung ergab sich im Verlaufe der Versuche die folgende Methode:

Als Halter dient ein Röhrchen aus gesintertem Al_2O_3 . Um ein Siliziumstäbchen zu befestigen, wird dieses am einen Ende mit einer feinen sehr heissen Gebläseflamme geheizt und im Moment des Schmelzens das ebenfalls erwärmte Sinterrohr leicht in die Schmelze gedrückt und die Flamme sofort entfernt. Gleichzeitig wird auch noch der für die Stromableitung notwendige Wolframdraht durch das Röhrchen in die Schmelze gesteckt. Im erkalteten Zustand wird mittels Alundumzement das obere Ende des Röhrchens mit dem Wolframdraht zusammengekittet. Durch dieses Befestigungssystem wirkt der obere, aus dem Röhrchen hervorstehende Teil des Wolframdrahtes in normaler Weise als Aufhänge- draht. Unterhalb der Kittung fungiert dagegen das Sinterrohr als Träger, während der Wolframdraht nur noch die Stromzufuhr zu besorgen hat. Die solchermassen hergestellte Befestigung ist mechanisch sehr spröde, erträgt aber ohne weiteres die verlangten Temperaturen bis zum Schmelzpunkt des Siliziums.

2. Der Gleichstromverstärker.

Das Messen von thermischen Emissionsströmen bedingt in den meisten Fällen einen Messbereich über mehrere Zehnerpotenzen. Es zeigte sich auch bereits bei den ersten Versuchen, dass die Messungen z. T. bei relativ tiefen Temperaturen durchgeführt werden

müssen. Aus diesem Grund wurde ein Gleichstromverstärker mit einer Verstärkung von etwa 10^4 und einem Messbereich bei wenigstens 5% Ablesegenauigkeit von 10^{-10} bis 10^{-4} Ampere konstruiert. Hierbei musste auch auf die Ausschaltung allfälliger kleiner Spannungsänderungen der Stromquellen Bedacht genommen werden. Zu diesem Zweck wurde eine Brückenschaltung mit zwei Röhren von gleichem Typ aufgebaut, wie in Fig. 6 dargestellt ist. Um die

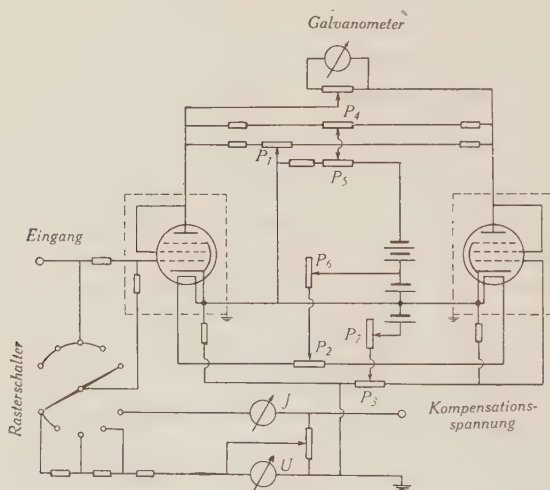


Fig. 6.
Gleichstromverstärker.

vollständige Kompensation der Speisespannungsschwankungen zu erreichen, sind folgende 3 Bedingungen zu erfüllen:

1. $\frac{R_{i1}}{R_{i2}} = \frac{R_{a1}}{R_{a2}}$ wegen Schwankungen der Anodenspannung (E_a).
2. $\left(\frac{dJ_{a1}}{dJ_{a2}} \right)_{E_a, J_h} = \frac{R_{a2}}{R_{a1}}$ wegen Schwankungen der Gitterspannung (E_g).
3. $\left(\frac{dJ_{a1}}{dJ_{a2}} \right)_{E_a, E_g} = \frac{R_{a2}}{R_{a1}}$ wegen Schwankungen des Heizstromes (J_h).

Sollen ausserdem bei Gleichgewicht auch gleiche Anodenspannungen erhalten werden, damit das Galvanometer stromlos wird ($J_G = 0$), so tritt noch als 4. Bedingung hinzu:

$$4. \left(\frac{J_{a1}}{J_{a2}} \right) = \frac{R_{a2}}{R_{a1}}.$$

Die Erfüllung dieser vier Bedingungen geschieht durch vier Stromverteilungspotentiometer, und zwar dienen den Bedingungen 1 und 1 die Potentiometer P_1 und P_4 , den Bedingungen 2 und 3

bzw. die Potentiometer P_2 und P_3 . Der Kontrolle und Einregulierung der Kompensation dienen die drei Schiebewiderstände P_5 , P_6 und P_7 , welche eine künstliche Änderung der drei fraglichen Speisespannungen gestatten. Die Einregulierung geschieht durch systematisches Untersuchen der Abhängigkeit der Differentialquotienten

$$\frac{\partial J_G}{\partial P_5}, \frac{\partial J_G}{\partial P_6}, \frac{\partial J_G}{\partial P_7} \quad \text{von } P_1, P_2, P_3 \text{ und } P_4$$

und sukzessive Annäherung an das Wertequadrupel, für welches die Differentialquotienten verschwinden. Für die Messung des Emissionsstromes wird das Galvanometer nur als Nullinstrument verwendet. Der am Gitterwiderstand entstehende Spannungsabfall wird durch eine Hilfsspannung kompensiert und diese direkt mit einem Voltmeter gemessen. Ströme über 100 Mikroampere werden sodann direkt durch ein Milliamperemeter gemessen. Die Eichung der Widerstände wurde mit Hilfe einer geeichten Wheatstonschen Brücke vorgenommen, wobei der Gleichstromverstärker direkt als Indikator der Brücke verwendet wurde. Die geeichte Brücke enthielt als grösste Widerstandswerte 10^5 Ohm, welche Messungen bis zu 10^7 Ohm gestatteten. Die Ermittlung des genauen Wertes des 10^9 -Ohm-Widerstandes gelang sodann durch Anschluss an einen zuvor gemessenen Hilfswiderstand von 10^7 Ohm.

Zur praktischen Ausführung des Verstärkers sei noch bemerkt, dass die ganze Schaltung wegen ihrer hohen Empfindlichkeit nach aussen vollkommen gepanzert werden muss. Verstärker und Stromquellen sind in zwei getrennten Metallgehäusen untergebracht und die Zuleitungen abgeschirmt. Bei der Konstruktion des Rasterhalters für die verschiedenen Messbereiche musste in bezug auf Isolation der grösste Widerstandswert des Verstärkereinganges berücksichtigt werden.

3. Die Temperaturmessung.

Zur Messung der Hohlraumtemperatur stand ein geeichtetes optisches Mikropyrometer von Siemens zur Verfügung, dessen etwa 20fache Bildvergrösserung der Temperaturmessung durch die 1 mm weite Öffnung keine Schwierigkeiten bot. Es arbeitet auf der roten Wellenlänge von 6500 Å. Mit zwei Rotfiltern verschiedener Durchlässigkeit und zwei Graufiltern versehen, besitzt es drei sich teilweise überdeckende Messbereiche zwischen 700 und 3000° C. Das Verschwinden des Glühfadens vor dem Bild der Ofenöffnung

konnte mit einer Sicherheit von $\pm 2^\circ$ festgestellt werden. Zu berücksichtigen war bei den Messungen lediglich der Durchlässigkeitskoeffizient D des Glases (welches vor allem durch Reflexion einen Teil des Lichtes „vernichtet“), nach welchem sich die wahre Temperatur T des Ofens aus dem gemessenen Wert T_m durch die Beziehung

$$\frac{1}{T} = \frac{1}{T_m} - \frac{\lambda}{c_2} \ln \frac{1}{D}$$

errechnet¹⁾. Beim Ausheizen des Ofens bildeten sich gelegentlich leichte Beschläge auf der Innenwand des Glasrezipienten, so dass der Wert von D geringen Schwankungen unterworfen war, die in der Regel ein Nachkontrollieren nach den Messarbeiten erforderten. Die Werte lagen in der Regel im Bereich von 0,6–0,7.

V. Ergebnisse.

1. Graphit.

Aus einem grösseren Block reinen Ceylongraphits wurden kleine Stäbchen ausgesägt und in der bereits beschriebenen Weise in den Ofen gehängt.

Der Graphit besitzt die Eigenschaft, dass seine sämtlichen Oxyde, insbesondere die bei *hohen* Temperaturen stabilen, gasförmig sind, weshalb sich an dessen Oberfläche keinerlei oxydartige Fremdschichten bilden können. Durch starkes Glühen (bis 2300°K) ist daher ohne Schwierigkeiten eine reine Oberfläche zu erhalten. Auch die Diffusionsgeschwindigkeit von Fremdmolekeln im Graphit scheint sehr hoch zu sein. Die Folge dieser Eigenschaft ist ein zu Beginn des Ausheizprozesses ausserordentlich hoher Strom positiver Ionen, welcher rasch abklingt. Schon nach einstündiger Entgasung wird die Emission vollkommen stabil, so dass die Messungen keine Schwierigkeiten mehr bereiten. Zwischen 1100 und 1900°C sind die Messungen streng reproduzierbar. Ihr Ergebnis ist in Fig. 7 graphisch dargestellt, und zwar wurde in der üblichen Weise $\log J/T^2$ in Funktion von $1/T$ aufgetragen. Auf diese Weise ist der Vergleich mit früheren Messungen ohne weiteres möglich, die zur Bestimmung der Austrittsarbeit Φ und der Mengenkonstanten A stets in dieser Art ausgewertet wurden. Es ergibt sich für die Austrittsarbeit für Graphit

$$\Phi = 4,38_7 \text{ eV}$$

¹⁾ Es erwies sich als vorteilhaft, die Differenz $T - T_m$ als Funktion von T_m und D zu tabellieren, um das fortwährende Umrechnen zu ersparen.

und aus der Gesamtoberfläche des Probekörpers errechnet sich der mittlere Wert der Mengenkonstanten

$$\underline{A = 15 \text{ Amp./cm}^2 \text{ grad}^2}.$$

REIMAN¹⁾ fand an graphitierten Kohlefäden $\Phi = 4,34 \text{ eV}$ und $A = 30 \text{ Amp./cm}^2 \text{ grad}^2$. Beide Messungen sind somit in sehr guter Übereinstimmung.

Da, wie in der Einleitung dargelegt wurde, die metallische Natur des Graphits noch nicht mit Sicherheit feststeht, ist ein

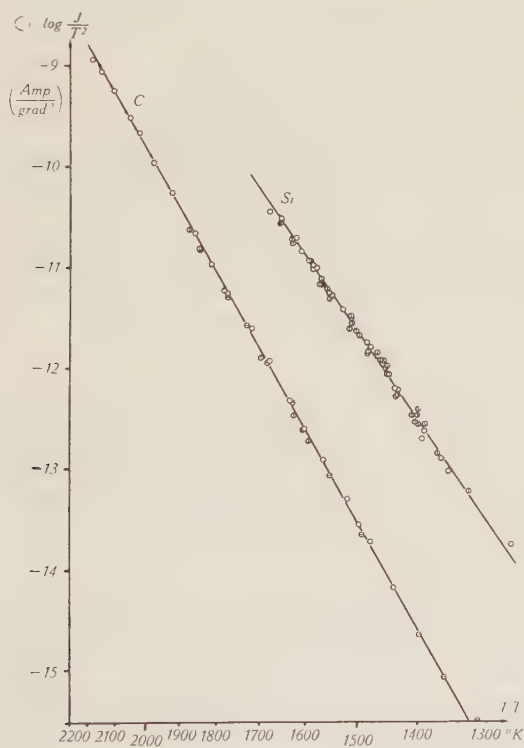


Fig. 7.

Thermische Elektronenemission von Graphit und Silizium.

Vergleich mit der in Abschnitt II entwickelten Theorie gerechtfertigt. Legt man dem Emissionsprozess die Formel (24) zu Grunde, die für einen entarteten Halbleiter mit verschwindender Akti-

¹⁾ A. L. REIMAN, Proc. Phys. Soc. **50**, 496 (1938).

vierungsenergie $\Delta B = 0$ Gültigkeit besitzt, so gelangt man zu folgendem Resultat:

$$\Phi_H = 4,56 \text{ eV}$$

und

$$A' = \frac{C(n_D)}{2} \cdot A = 7,35 \cdot 10^4 \text{ Amp./cm}^2 \text{ grad.}$$

Mit $A = 120 \text{ Amp/cm}^2 \text{ grad}^2$ wird

$$C(n_D) = 1220 \text{ grad}$$

$C(n_D)$ ist nach (23) das Mass für die Steilheit der in Fig. 3 dargestellten Funktion $\varrho(n_D, T)$ und entspricht einer Störstellenkonzentration von grössenordnungsmässig

$$n_D \sim 1 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$$

und damit einer bei hohen Temperaturen *teilweisen* Entartung des Elektronengases im Graphit. Die verhältnismässig hohe elektrische Leitfähigkeit und ihr „metallischer“, d. h. *negativer* Temperaturkoeffizient sind mit diesen Verhältnissen durchaus verträglich und stehen mit der Auffassung des Graphits als *entarteter Halbleiter* jedenfalls nicht in Widerspruch.

2. Silizium.

Aus homogenen Bruchstücken eines Siliziumschmelzblockes wurden mittels einer Diamanttrennscheibe die gewünschten Siliziumprobekörper in Stäbchenform herausgeschnitten. Sie wurden vor dem Einbringen ins Vakuum mit Alkohol und Azeton vorgereinigt.

Das Dioxyd des Siliziums (SiO_2) ist fest und chemisch ausserordentlich widerstandsfähig. Die Siliziumoberfläche bedeckt sich bei Berührung mit Luft mit einer quarzähnlichen Fremdschicht, deren Existenz sich auch bei Messungen des elektrischen Widerstandes bemerkbar macht. Es scheint daher zunächst fast aussichtslos, eine fremdschichtfreie Oberfläche erlangen zu können. BILTZ hat jedoch nachgewiesen, dass sich eine Mischung von Silizium und SiO_2 beim Erhitzen im Vakuum oberhalb etwa 1200°C durch die Reaktion $\text{Si} + \text{SiO}_2 \rightarrow 2 \text{SiO}$ in Form von gasförmigem *Siliziummonoxyd* verflüchtigt. Es war daher zu hoffen, dass die quarzähnliche Fremdschicht des Siliziums beim Erhitzen auf die genannte Temperatur von selbst durch Reduktion verschwinden werde. Dieser Vorgang müsste sich durch eine Änderung der Steilheit der Emissionskurven bemerkbar machen. Solche Vorgänge sind

von ZWIKKER¹⁾ theoretisch behandelt worden. Die Fremdschicht stellt elektrisch eine Doppelschicht dar, deren Dipolmoment proportional der Zahl n der Dipole vom Moment μ ist und zufolge der Wärmebewegung bei der Temperatur T einen Potentialsprung der Grösse

$$\Delta\Phi = \frac{4\pi\mu n}{T}$$

erzeugt. Spielt sich nun an der Oberfläche eine Veränderung der Fremdschicht ab, z. B. eine Zu- oder Abnahme der Dipolzahl n pro cm^2 , so wird

$$\Delta\Phi = 4\pi\mu \frac{n(T)}{T}.$$

Setzt man zur Vereinfachung $4\pi\mu n = c$ und die Ableitung $dc/dT = c'$ und entwickelt den Ausdruck in der Art von ZWIKKER nach T in der Umgebung der Temperatur T_0 , so wird, wenn man die Taylorentwicklung nach dem linearen Glied abbricht,

$$\Delta\Phi(T) = \Delta\Phi_{T_0} + \left(\frac{d\Delta\Phi}{dT}\right)_{T_0}(T-T_0) = \left[\Delta\Phi_{T_0} - T_0\left(\frac{d\Delta\Phi}{dT}\right)_{T_0}\right] + \left(\frac{d\Delta\Phi}{dT}\right)_{T_0}T$$

und durch Einsetzen von $\Delta\Phi = c(T)/T$

$$\Delta\Phi = \left(\frac{2c_0}{T_0} - c'_0\right) - \left(\frac{c_0}{T_0^2} - \frac{c'_0}{T_0}\right)T.$$

Durch Einsetzen in die Emissionsgleichung

$$\ln \frac{J}{T^2} = \ln A_0 - \frac{\Phi_0 + \Delta\Phi}{kT}$$

und Ableitung der letzteren nach $1/T$ gelangt man zu folgendem Ausdruck für die Neigung der Emissionslinie:

$$\frac{d \ln J/T^2}{d(1/T)} = -\frac{1}{k} \left(\Phi_0 + \frac{2c_0}{T_0} - \frac{dc_0}{dT} \right); \quad \frac{dc_0}{dT} \leq 0.$$

Diese Gleichung zeigt, dass durch Veränderung der Oberflächenfremdschichten theoretisch jede Steilheit der Emissionslinie, auch eine *negative*, möglich wird. Tatsächlich beobachtet man im Temperaturgebiet um 1200°C die verschiedensten Temperaturabhängigkeiten der thermischen Emission, d. h. sowohl Anstieg wie *Abnahme* des Emissionsstromes mit steigender Temperatur! Die

¹⁾ C. ZWIKKER, Phys. Zs. **30**, 578 (1929).

zugehörigen Kurven sind teils in kleinen Bereichen sogar reversibel, wie z. B. die in der Fig. 8 (Si mit Fremdschicht) dargestellten Kurve, deren steilster Teil bei 1180°C mit steigender wie mit fallender Temperatur durchlaufen werden konnte, aber sicher nicht dem reinen Si zugeordnet werden kann.

Ausser diesen oxydartigen Fremdschichten scheint aber das Si bei Anwesenheit kleinster Mengen von organischen Dämpfen zur Bildung einer karbidartigen Oberflächenschicht zu neigen. Es

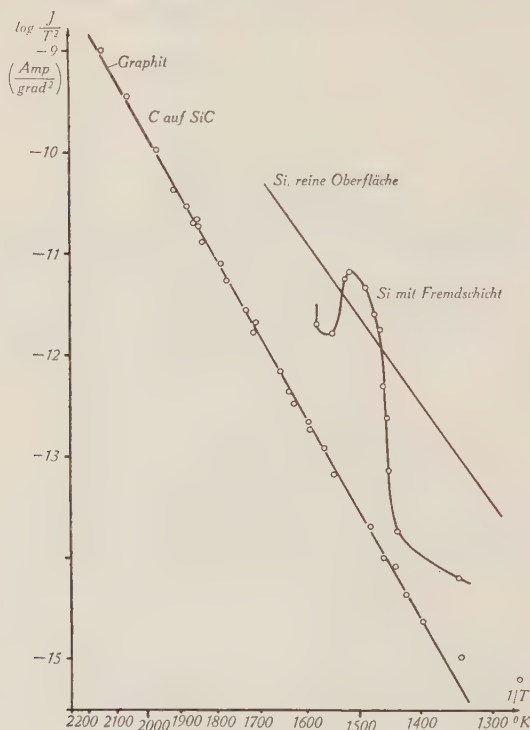


Fig. 8.

gelang jedoch auch bei Si nach mindestens 15stündigem Ausheizen nahe der Schmelztemperatur eine völlig reproduzierbare Emission zu erreichen, wie sie in der Fig. 7 dargestellt ist.

Aus der Darstellung $\log J/T^2$ gegen $1/T$ ergibt sich für Silizium

$$\Phi = (3,59 \pm 0,1) \text{ eV}$$

und

$$A = (8,0 \pm 3) \text{ Amp./cm}^2 \text{ grad}^2.$$

Dieselben Erwägungen wie beim Graphit führen nach Formel (24) auf

$$\Phi_H = (3,72 \pm 0,1) \text{ eV}$$

und

$$A' = (1,1 \pm 0,4) \cdot 10^4 \text{ Amp./cm}^2 \text{ grad.}$$

Daraus berechnet man

$$C(n_D) = (177 \pm 70) \text{ grad}$$

und unter Zugrundelegung von (23)

$$n_D \sim (1 : 2) \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}.$$

Man befindet sich damit, unter Voraussetzung $AB = 0$, an der Grenze der beginnenden Entartung und damit näherungsweise schon im Gültigkeitsbereich der Formel (18), die unter der Voraussetzung $n_D \ll 3 \cdot 10^{20}$ hergeleitet wurde. Tatsächlich ergeben sich mit (18) folgende Werte:

$$\Phi_H = (3,79 \pm 0,1) \text{ eV}$$

$$A'' = (7,5 \pm 3) \cdot 10^5 \text{ Amp./cm}^2 \text{ grad}^{1/2}$$

und

$$n_D = (2 \div 4) \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}.$$

Die gefundenen Werte für n_D stimmen befriedigend überein und liegen etwa eine Zehnerpotenz unterhalb dem entsprechenden Wert für Graphit. Im Hinblick auf die bedeutend niedrigere Bildungstemperatur des festen Siliziums gegenüber dem Graphit ist im Silizium eine geringere Zahl „eingefrorener“ Fehlstellen n_D durchaus wahrscheinlich.

3. Siliziumkarbid.

Das verwendete Material stammt aus den Karborundumöfen, in deren Innerem sich bei sehr hohen Temperaturen durch Sublimation Kristalldrüsen bilden, welche häufig einzelne schön ausgebildete hexagonale SiC-Einkristalle enthalten. Aus solchen Kristallen wurden mittels der Diamanttrennscheibe prismatische Stäbchen ausgefräst, welche in der bekannten einfachen Weise im Ofen aufgehängt werden können.

Das SiC besitzt wie das Si selbst, jedoch in stärkerem Masse, eine oxydartige Oberflächenfremdschicht. Ihre Natur ist aber wegen der Anwesenheit des Kohlenstoffs komplizierter als bei Si, indem offenbar ausser dem quarzähnlichen Oxyd auch noch eine unter

der Bezeichnung Siloxicon bekannte Verbindung der Zusammensetzung $\text{Si}_2\text{C}_2\text{O}$ auftritt. Die Fremdschicht bildet sich bei jeder Berührung mit Luft (oder Sauerstoff) auch bei Zimmertemperatur praktisch momentan. Bei Erhöhung der Temperatur in Luft wird die Schicht dicker und nimmt immer quarzähnlichere Struktur an, wie dies HEINE und SCHERRER¹⁾ durch Elektronenbeugung an der Oberfläche von SiC gezeigt haben. Die Beurteilung der Beständigkeit dieser Fremdschichten bzw. der Möglichkeiten ihrer Entfernung ist schwer und wurde an Hand verschiedener Arbeiten versucht. Von BILTZ wurde festgestellt, dass sich ein Gemisch von SiO_2 und C beim Erhitzen im Vakuum ebenso verflüchtigt wie SiO_2 und Si nach der Gleichung



Auch eine Arbeit von BAUR²⁾ über das Gleichgewicht des Systems



deren Ergebnisse in Fig. 9 dargestellt sind, zeigt zunächst bei höheren Temperaturen und tiefen Drucken eine Verschiebung des Gleichgewichtes zugunsten des Systems SiC—CO. Andererseits ist aber aus dem Gleichgewicht des Systems SiO_2 —C und Si—CO bei hohen Temperaturen auch eine zunehmende Bildung von Si möglich. Wie man hieraus erkennt, sind die zu erwartenden Vorgänge kaum vorherzusehen und müssen mit Hilfe des Experiments ermittelt werden. Es zeigte sich denn auch bald, dass durch das Glühen des SiC an dessen Oberfläche Veränderungen vor sich gehen. Die im Neuzustand schwach grünlich durchscheinenden Stäbchen werden durch das Glühen im Hochvakuum an ihrer Oberfläche mattschwarz. Es handelt sich hierbei offenbar um eine Ablagerung einer karbidfremden Schicht, und zwar erreicht sie bei längerem Glühen auf über 1800°C eine solche Stärke, dass sie mit einer feinen Klinge mechanisch abgetragen werden kann. Das schwarze Pulver zeigt in heisser verdünnter Kalilauge keinerlei Gasentwicklung, wie dies bei Silizium durch Bildung von Wasserstoff beobachtet wird. Die Annahme, dass es sich um Kohlenstoff handeln müsse, wird sofort durch die Messung der thermischen Emission bestätigt. In Fig. 8 sind die an einem stark geglühten Siliziumkarbid-Probe-körper festgestellten Messpunkte eingezeichnet, während die Gerade die aus der Graphitemission Fig. 7 übertragene Emissionslinie darstellt. Die vollkommene Übereinstimmung ist offensichtlich.

¹⁾ H. G. HEINE und P. SCHERRER, H. P. A. **8**, 489 (1940).

²⁾ E. BAUR, Zs. f. El.Chem. **2**, 69 (1932).

Der Kohlenstoff kann aber nur aus dem Kristallgitter des SiC selbst stammen und zeigt somit eine relativ rasche Zersetzung des Siliziumkarbids bei höheren Temperaturen an, ein Verhalten, das aus der Tatsache der hohen Bildungstemperatur nicht ohne weiteres erwartet worden war. Aus der nach der Arbeit von RUFF und KONSCHAK¹⁾ bekannten Dissoziationsdruckkurve des SiC, welche ebenfalls in Fig. 9 dargestellt ist, wäre eigentlich bei Temperaturen unter 1350°C , wo der Dissoziationsdruck den Wert

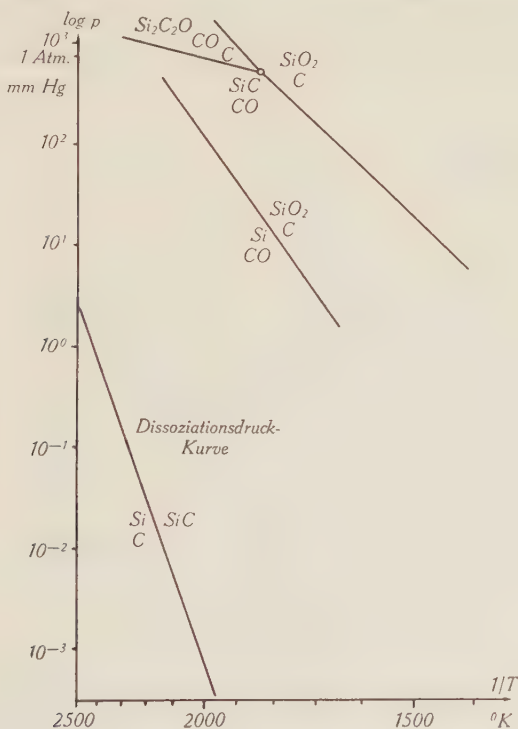


Fig. 9.

Zustandsdiagramm der Si-C-Verbindungen.

10^{-7} mm Hg noch nicht erreicht, keine merkliche Zersetzung mehr zu erwarten. Tatsächlich beobachtet man aber den Beginn der Verfärbung bereits wenig unter 1300°C . Danach ist zu vermuten, dass die Zersetzung schon im Gebiet um 1200°C für die Emission merklich wird, d. h. in einem Temperaturgebiet, in welchem die

¹⁾ O. RUFF und M. KONSCHAK, Zs. f. El.Chem. **32**, 520 (1926).

quarzähnliche Oxydoberfläche noch nicht zum Verschwinden gebracht werden kann. Aus diesen Gründen muss sich die Messung der thermischen Emission des SiC mit *reiner* Oberfläche ganz bedeutend schwieriger gestalten. Tatsächlich handelt es sich um das Problem, Quarz bei nicht zu hohen Temperaturen unter Luftabschluss auf irgend eine Weise restlos und ohne Zurücklassung anderer Bestandteile von der SiC-Oberfläche zu entfernen.

Die stufenweise Durchmessung eines Probekörpers, beginnend mit tiefen Temperaturen, zeigt folgendes Verhalten. Die Durchführung der Messung ist aus dem in Fig. 10 schematisch dargestellten zeitlichen Verlauf der Temperatur zu erkennen. Hierbei

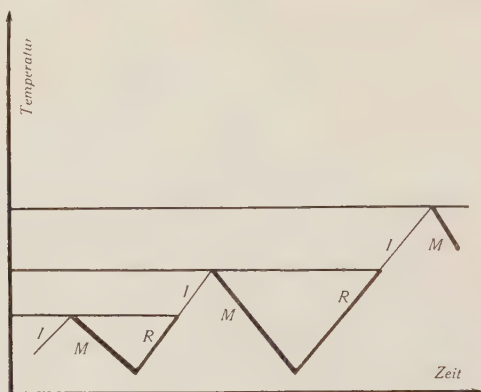


Fig. 10.

Prinzipieller Gang der Messung an Siliziumkarbid.

I = irreversible Emission

M = Messung

R = reversible Emission.

sind die Messwerte bei steigender Temperatur in der Regel irreversibel (durch *I* bezeichnet), sofern nicht bereits vorher höhere Temperaturen durchlaufen worden sind. In diesem letzteren Fall sind die Messpunkte reversibel (mit *R* bezeichnet). Die Messungen werden bei sinkender Temperatur ausgeführt und ergeben, in der üblichen Weise aufgezeichnet ($\ln J/T^2 = f(1/T)$), gerade Linien, deren Verlängerungen sich auf der Ordinatenachse schneiden (Fig. 11). Ihre Steilheit ist um so grösser, je höher die vorangegangenen Gipfeltemperaturen liegen. Dieses Verhalten zeigt, dass es sich bei den Oberflächenveränderungen nicht um die von ZWICKER behandelte Art der Anlagerung oder Abtragung einer Doppelschicht handelt. Bei jenen Veränderungen laufen der Ände-

rung der Austrittsarbeit notwendig solche der Konstanten A parallel, was in diesem Fall nicht zutrifft; denn die Konstante $\log A$ ist gleich dem Wert des Ordinatenabschnittes der Emissionslinien. Die Linien gehen schliesslich beim Erwärmen über 1500°C in die Emissionslinie des Graphits über, worauf keine weiteren Veränderungen mehr eintreten.

Dieses Verhalten eines vollkommen allmählichen Überganges von der Emission durch eine oxydartige Oberflächenfremdschicht

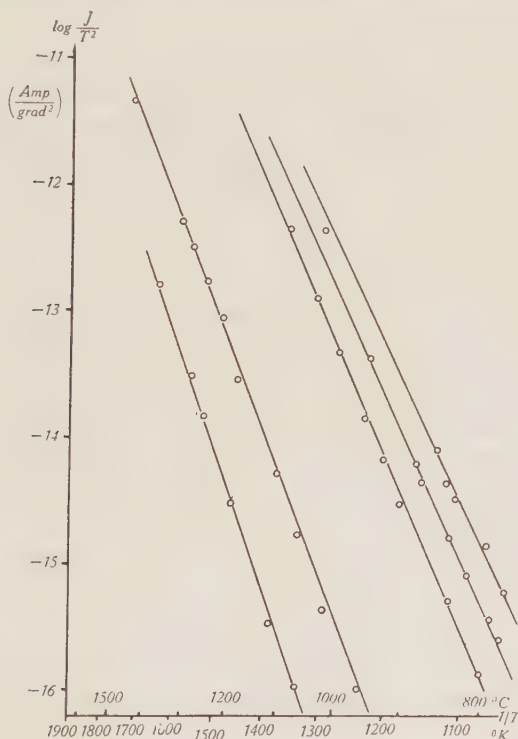


Fig. 11.

Thermische Emission von SiC mit Oberflächenschichten.

zur Graphitemission deutet darauf hin, dass die Zersetzung des Siliziumkarbids bereits bei Temperaturen um 900°C merklich wird. Das Verschwinden der „Quarz“-Oberfläche, welches bestimmt der Theorie von ZWICKER genügen müsste, jedoch erst oberhalb 1300°C eintreten kann, wird durch die viel früher einsetzende Zersetzung des SiC völlig verdeckt.

VI. Schluss.

Die Messung der thermischen Elektronenemission von Graphit und Silizium gelingt mit Hilfe der dieser Arbeit zugrundeliegenden Messmethode einwandfrei. Dies ist vor allem dem Umstand zuzuschreiben, dass sowohl Graphit wie auch Silizium als *Elemente* bis zum Sublimations- bzw. Schmelzpunkt stabil sind und die Erzeugung freischichtfreier Oberflächen zulassen.

Dagegen stösst man beim Siliziumkarbid auf dieselben grundsätzlichen Schwierigkeiten, wie sie sich bei allen bisher bekannten halbleitenden *Verbindungen* geltend machen. Erstens sind diese bezüglich ihres Fehlordnungsgrades und damit ihrer elektrischen Eigenschaften im allgemeinen nur bei so tiefen Temperaturen stabil, wo keine thermischen Emissionsströme mehr gemessen werden können. Infolge des exponentiellen Abfalles der Emissionsströme mit der Temperatur bietet selbst die Anwendung eines Zählrohres zur Messung derselben keine Aussicht, da die Grenze der Empfindlichkeit bei einer Senkung der Temperatur um wenige hundert Grad bereits wieder erreicht wird. Zweitens zeigen viele Halbleiter die Tendenz zur Bildung von oberflächlichen Sperrschichten, eine Komplikation, die auch durch Messungen bei tieferen Temperaturen nicht beseitigt werden kann.

Zum Schlusse benützen wir gerne die Gelegenheit, unserem verehrten Lehrer, Herrn Prof. Dr. P. SCHERRER, für das Interesse an dieser Arbeit und die Überlassung der apparativen Hilfsmittel herzlichst zu danken.

Zürich, Physikalisches Institut der ETH.

Dualer Zerfall des Kalium 40

von E. Bleuler und M. Gabriel.

(31. VIII. 1946.)

Zusammenfassung: Der K-Einfang $K_{19}^{40} \rightarrow A_{18}^{40}$ wird durch Absorptionsmessung der dabei auftretenden Röntgenstrahlung nachgewiesen. Das Verzweigungsverhältnis zwischen den beiden Übergängen des Kalium in Argon und Calcium beträgt $1,9 \pm 0,4$. Die partielle Halbwertszeit des β -Zerfalls wird zu $(7,0 \pm 1,0) \cdot 10^8$ a gemessen.

1. Einleitung.

K^{40} zerfällt unter Aussendung eines kontinuierlichen β -Spektrums von $(1,35 \pm 0,05)$ MeV Grenzenenergie¹⁾ in Ca^{40} , doch ist auch ein Übergang in das andere Nachbarisobar A^{40} zu erwarten. Dieser kann durch β^+ -Emission oder K-Einfang erfolgen. Während die Zahl der Positronen kleiner als 1% der β -Intensität ist²⁾, deuten folgende Ergebnisse auf grössere Häufigkeit des K-Einfanges hin:

a) Aus der grossen Häufigkeit von A^{40} schliesst von WEIZSÄCKER auf ein Verhältnis der Übergangswahrscheinlichkeiten von $\lambda_K/\lambda_- \approx 1/2$ ³⁾.

b) Die von K^{40} ausgesandte γ -Strahlung von $(1,54 \pm 0,1)$ MeV lässt sich nicht in den Zerfall $K^{40} \rightarrow Ca^{40}$ einordnen⁴⁾, so dass sie dem Übergang in A^{40} zugeschrieben werden muss.

Experimentell kann der K-Einfang nur durch Nachweis der entstehenden Röntgenquanten festgestellt werden. THOMPSON und ROWLANDS⁵⁾ finden in der Wilsonkammer neben den Spuren der Zerfallselektronen Kondensationstropfen, die sie den bei der Absorption von Röntgenstrahlen im Kammergas ausgelösten Photoelektronen zuweisen. Das Verzweigungsverhältnis berechnen sie zu $\lambda_K/\lambda_- = 3-4$. Da dieser Wert nach ihren eigenen Angaben mit grosser Unsicherheit behaftet ist, versuchten wir, die Intensität der Röntgenstrahlung im Zählrohr zu messen und gleichzeitig mittelst selektiver Absorption nachzuweisen, dass es sich dabei um die K_x -Strahlung des Argon handelt.

2. Apparatur.

Die in Frage kommenden Wellenlängen liegen in der Nähe von 4 Å; dies bedingt, dass sich zwischen der aktiven Schicht und dem Zählvolumen ausser den selektiven Absorbern nur möglichst wenig abschwächende Masse befinden darf. Als Absorber könnten prinzipiell Metalle oder Gase verwendet werden. Metalle eignen sich hier jedoch nicht, da sehr dünne homogene Schichten hergestellt werden müssten (Dicke $\sim 10^{-4}$ cm). Die Gase haben ausserdem den Vorteil, dass ihr Absorptionsvermögen durch Ändern des Druckes rasch gewechselt werden kann. Nach Tabelle 1 eignen sich als selektive Absorber zur Unterscheidung der Röntgenlinie K_α von Argon [$K_\alpha(A)$] gegenüber $K_\alpha(K)$ und $K_\alpha(Ca)$: Argon und CCl_4 .

Tabelle 1.

Massenabsorptionskoeffizienten μ/ρ in $\text{cm}^2\text{gr}^{-3}$

Element	$\lambda K_\alpha \text{ Å}$	A	CCl_4
A	4,18	186	1490
K	3,74	1350	1100
Ca	3,36	1000	825

Bei Vorliegen von $K_\alpha(Ca)$ oder $K_\alpha(K)$ wäre die Absorption in CCl_4 und Argon bei gleicher Massendichte praktisch dieselbe, während sie sich bei $K_\alpha(A)$ um einen Faktor 8 unterscheidet. Wegen des ähnlichen Verhaltens der Strahlung von Ca und K werden wir letztere im Folgenden nicht mehr gesondert aufführen.

Abbildung 1 zeigt das Zählrohr im Längsschnitt. Das Zählvolumen ist durch eine Folie (Cellux 20 μ) abgeschlossen. Der Träger aus Messing weist auf der wirksamen Länge von 15 cm 1760 Löcher von 3,0 mm Durchmesser und 0,2 mm Abstand auf. Die Folie wurde mit Perrocellin trocken aufgespannt und an den Zählrohrenden mit zwei nassen Celluxstreifen umwickelt. Sie hielt beidseitige Überdrucke von 100 Torr aus. Ihr Schwächungskoeffizient für $K_\alpha(A)$ beträgt $(200 \pm 1) \text{ cm}^{-1}$ und für die Zerfallselektronen $(15 \pm 0,5) \text{ cm}^{-1}$.

Als Zählrohrfüllung musste eine Mischung gewählt werden, die ohne allzu hohe Arbeitsspannung eine möglichst grosse Ausbeute an Photoelektronen ergab; hiezu eignete sich Argon mit CCl_4 als Zusatz. Die verwendete Füllung bestand aus 10 Torr CCl_4 , 6–7 Torr Petroläther und 25–28 Torr Argon. Ihre Arbeitsspannung lag zwischen 2000 und 2500 Volt, bei Plateauxbreiten von 50–150 Volt.

Der Schwächungskoeffizient für $K_{\alpha}(A)$ beträgt $(0,150 \pm 0,003) \text{ cm}^{-1}$, die mittlere Ansprechwahrscheinlichkeit 37%.

Der Nulleffekt wurde bei der Messanordnung unter Blei und Eisen zu 45 Stößen pro Minute gemessen.

Die aktive Schicht aus KF ist konzentrisch zum Zählvolumen angeordnet. KF ist sehr stark hygroskopisch; die Herstellung einer dünnen, trockenen Schicht bietet deshalb einige Schwierigkeiten. KCl ist wegen der Absorption der Strahlung in der Schicht selber nicht geeignet; sein Schwächungskoeffizient pro Kaliumatom ist

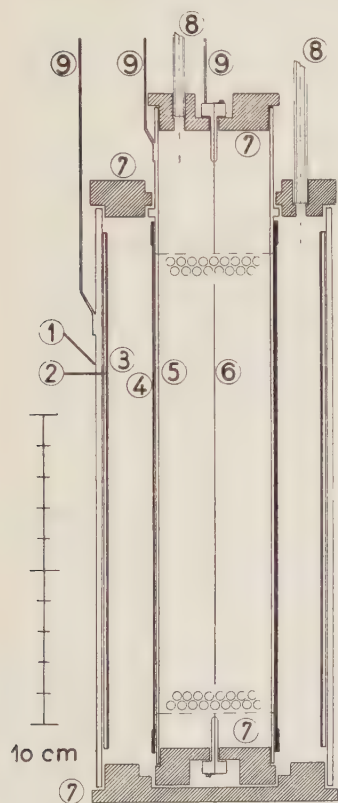


Fig. 1.

- (1) Aussenrohr, 2,5 mm Messing
- (2) Einsatzblech aus Messing
- (3) KF-Schicht, Dicke $\sim 6 \cdot 10^{-4} \text{ cm}$,
Fläche 325 cm^2
- (4) Cellux-Folie 20μ
- (5) Folienträger, 0,5 mm Messing
- (6) Zähldraht, $\varnothing 0,2 \text{ mm}$ rostfreier Stahl
- (7) Abschlusstopfen aus Cibanit
- (8) Anschlüsse zur Füllapparatur
- (9) Elektrische Anschlüsse

um einen Faktor 5 grösser als derjenige von KF. Die Dicke der Schicht wurde entsprechend der mittleren Reichweite der $K_{\alpha}(A)$ gewählt. Die Absorbergase werden in den Aussenraum zwischen Schicht und Folie eingefüllt.

Tabelle 2 zeigt die Intensitätsverhältnisse beim Durchgang

durch das Rohr für zwei extreme Fälle des Absorbergases (Schwächungskoeffizienten für $K_\alpha(\text{A})$: $\mu_1 = 0,00$; $\mu_2 = 0,66 \text{ cm}^{-1}$).

Tabelle 2.

Absorptionsfüllung	Elektronen		$K_\alpha(\text{A})$	
	1	2	1	2
Durchlässigkeit der KF-Schicht	0,97	0,97	0,72	0,72
„ des Absorbers	1,00	0,99	1,00	0,35
„ der Folie	0,97	0,97	0,75	0,75
Mittlerer Raumwinkel / 4π	0,30	0,30	0,30	0,30
Ansprechwahrscheinlichkeit	0,95	0,95	0,37	0,37
Registrierter Bruchteil	0,268	0,265	0,060	0,021

3. Messungen.

Die Stosszahlen für die Absorberfüllungen der Tabelle 2 berechnen sich zu

$$N_1 = N_0 (0,268 + r \cdot 0,060) \text{ bzw. } N_2 = N_0 (0,265 + r \cdot 0,021),$$

wobei N_0 die Zahl der Zerfallselektronen, $r \cdot N_0$ diejenige der Röntgenquanten bedeuten. Die Messungen mit zwei verschiedenen Absorberfüllungen liefern also einen Wert für r .

Während einer Messreihe wurden die beiden Füllungen periodisch (nach je ca. 2 Stunden) gewechselt.

a) Zuordnung der Röntgenstrahlung.

In Messung I der Tabelle 3 wurden zwei Absorberfüllungen gewählt, welche die Ca- K_α -Strahlung gleich, $K_\alpha(\text{A})$ aber stark verschieden schwächten.

Tabelle 3.
Selektionsmessungen.

Messung	Messdauer Min.	Absorptionsfüllungen				Differenz der Röntgenintensität pro Minute		
		μ_1		μ_2		berechnet		gemessen
		$K_\alpha(\text{A})$	$K_\alpha(\text{Ca})$	$K_\alpha(\text{A})$	$K_\alpha(\text{Ca})$	$K_\alpha(\text{A})$	$K_\alpha(\text{Ca})$	
I	480	0,179	0,306	0,586	0,306	$+11,6 \cdot r$	$+0,1 \cdot r$	$+2,7 \pm 1,0$
II	820	0,031	0,018	0,033	0,181	$+0,20 \cdot r$	$+3,7 \cdot r$	$-0,20 \pm 0,86$
III	4500	0,031	0,018	0,033	0,181	$+0,15 \cdot r$	$+3,3 \cdot r$	$+0,45 \pm 0,37$

Tatsächlich zeigt sich ein Intensitätsunterschied, der etwa $r = 0,23$ entspricht.

Bei den Messungen II und III wurden Mischungen von CCl_4 und Argon verwendet, die gleiches Absorptionsvermögen für $K_\alpha(\text{A})$, dagegen verschiedenes für $K_\alpha(\text{Ca})$ besitzen. Da bei diesen beiden Messungen die KF-Massen ungleich waren, zeigen die berechneten Differenzen geringe Unterschiede.

Die gemessenen Intensitäten schliessen eine merkliche K-Strahlung von Kalium oder Calcium aus.

b) Bestimmung der Röntgenintensität.

Zur genauen Berechnung von r wurden längere Messreihen aufgenommen, deren Resultate, mit den mittleren Fehlern, in Tabelle 4 zusammengestellt sind.

Tabelle 4.
Ausmessung.

Messdauer Min.	1860	820	900	480	1050	1500	480	800	480	800
r %	18,2	26,2	25,1	24,0	28,0	22,6	18,8	16,9	18,6	22,2
Δr %	2,5	3,4	3,8	8,7	3,9	4,3	6,6	4,9	7,7	6,0

Das Absorptionsvermögen der Füllungen für $K_\alpha(\text{A})$ wurde möglichst verschieden gewählt, ohne auf $K_\alpha(\text{Ca})$ oder $K_\alpha(\text{K})$ Rücksicht zu nehmen.

Aus Tabelle 4 ergibt sich als Mittelwert

$$\bar{r} = (22,0 \pm 1,4) \%$$

Bei einer Gesamtstosszahl von $1,7 \cdot 10^6$ (ca. 150 pro Minute) betrug die Differenz an gemessenen Röntgenquanten $21'460 \pm 1'300$.

4. Auswertung.

Für die Fluoreszenzausbeute wurde auf Grund verschiedener Messungen^{6) 7) 8) 9)} und nach dem theoretischen Verlauf in Abhängigkeit von der Kernladung^{10) 11)} ein Wert von $(12 \pm 2) \%$ angenommen. Wir finden damit als wirkliches Verzweungsverhältnis

$$\lambda_K / \lambda_- = 1,9 \pm 0,4$$

Die angegebene Abschätzung des wahrscheinlichen Fehlers ist wegen der starken Streuung einzelner Messwerte der Fluoreszenzausbeute — bei Unkenntnis allfälliger systematischer Fehler —

und wegen der beschränkten Genauigkeit der Theorie für leichte Elemente etwas unsicher.

Die durchgeführten Messungen mit drei verschiedenen Schichtdicken gestatten einen Rückschluss auf die partielle Halbwertszeit des β^- -Zerfalls. Sie wird zu

$$T_{\text{part}} = (7,0 \pm 1,0) \cdot 10^8 \text{ a}$$

gefunden, wobei die angeführte Streuung die Fehlergrenzen festlegt. Dies ergibt eine totale Halbwertszeit für K^{40} von $T_{\text{tot}} = 2,4 \cdot 10^8 \text{ a}$, welche die geringe relative Häufigkeit des Isotopes zu erklären vermag.

Unserem verehrten Lehrer, Herrn Prof. Dr. P. SCHERRER, danken wir für sein stetes Interesse und viele fördernde Ratschläge.

Zürich, Physikalisches Institut der ETH.

Literaturverzeichnis.

- 1) DZELEPOW, HOPJOWA und VOROBJOV, Phys. Rev. **69**, 538 (1946).
 - 2) BOTHE und FLAMMERSELD, Naturw. **29**, 194 (1941) (Fussnote).
 - 3) v. WEIZSÄCKER, Phys. Zs. **38**, 623 (1937).
 - 4) WÄFFLER und HIRZEL, Helv. Phys. Acta **19**, 216 (1946).
 - 5) THOMPSON und ROWLANDS, Nature **152**, 103 (1943).
 - 6) HAAS, Annalen d. Phys. **16**, 473 (1933).
 - 7) MARTIN, BOWER und LABY, Proc. Roy. Soc. A **148**, 40 (1935).
 - 8) LOCHER, Phys. Rev. **40**, 484 (1932).
 - 9) COMPTON, X-Rays in theory and experiment, S. 480 (1935).
 - 10) WENTZEL, Zs. f. Phys. **43**, 524 (1927).
 - 11) BURHOP, Proc. Roy. Soc. A **148**, 272 (1935).
-

Über die Ausbildung der Entladung in Zählrohren mit Alkoholdampfzusatz

von F. Alder, E. Baldinger, P. Huber und F. Metzger, Basel.

(26. XI. 1946.)

Zusammenfassung. Theoretischer Teil: Die Entladungseigenschaften selbstlöschender Zählrohre sind von verschiedenen Autoren wiederholt untersucht worden. Das Ergebnis dieser Arbeiten lässt sich in einem einheitlichen Bild über den Entladungsmechanismus zusammenfassen, welches die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Entladung zu berechnen gestattet. Ferner ermöglicht es die Berechnung des Stromimpulses, der während einer Entladung im Zählrohr fließt.

Experimenteller Teil: Um den Entladungsvorgang quantitativ zu verstehen, ist die Kenntnis des Absorptionskoeffizienten μ_0 (760 mm Hg, Zimmertemperatur) für Lichtquanten im Füllgas notwendig. In einem Argon-Alkohol-Zählrohr wirkt der Alkoholdampf als absorbierendes Gas. Der Absorptionskoeffizient von Alkoholdampf wird aus einer Koinzidenzmessung bestimmt und man findet: $\mu_0 = 640 \text{ cm}^{-1}$.

Die Ausbreitungsgeschwindigkeit v der Entladung wird mit Hilfe eines sogenannten „Blendenzählrohrs“ gemessen, unter Benützung desselben Prinzips, das FIZEAU zur Ermittlung der Lichtgeschwindigkeit verwendete. Für eine Zählrohrfüllung von 64 mm Hg Argon + 16 mm Hg Alkoholdampf und eine Zählrohrspannung von 1100 Volt beträgt die Ausbreitungsgeschwindigkeit $(8,35 \pm 0,05) \cdot 10^6 \text{ cm/sec}$.

Die Aufnahme des Stromimpulses erfolgt mit einem Breitbandverstärker und einer Kathodenstrahlröhre. Die Kenntnis der Impulsform gibt uns eine weitere Möglichkeit zur Bestimmung der Ausbreitungsgeschwindigkeit v . Die so erhaltenen Werte stimmen mit den am Blendenzählrohr gewonnenen innerhalb der Fehlergrenze überein.

Die Druck- und Spannungsabhängigkeit der Ausbreitungsgeschwindigkeit wird aus der Impulsform ermittelt. Es zeigt sich, dass bei fester Zählrohrfüllung die Ausbreitungsgeschwindigkeit beinahe linear mit der Spannung anwächst, während bei konstanter Spannung die Ausbreitungsgeschwindigkeit mit zunehmendem Alkoholdruck abnimmt.

I. Einleitung.

Im Laufe seiner Untersuchungen an Zählrohren bemerkte TROST¹⁾, dass der Zusatz eines vielatomigen Gases den Entladungsvorgang wesentlich ändert, indem infolge eines inneren Mechanismus die Entladung von selbst abbricht. Die Abklärung der Entladungseigenschaften dieser sogenannten „selbstlöschenden“ Zählrohre bildete den Gegenstand zahlreicher Arbeiten^{1), 2), 3), 4), 5), 6)}. Das Ergebnis dieser Untersuchungen lässt sich etwa folgendermassen zusammenfassen:

Elektronen, die in einem Zählrohr ausgelöst werden, wandern auf den Draht zu. In dessen Umgebung ist die Feldstärke genügend gross, um die Gasmoleküle zu ionisieren und so eine Elektronenlawine zu erzeugen. Die Elektronen werden rasch auf dem Zählrohrdraht gesammelt, und es bleibt eine positive Ionenwolke zurück. Die in der Elektronenlawine entstehenden U.V.-Lichtquanten werden durch den vielatomigen Gaszusatz hinreichend absorbiert, so dass Auslösung von Photoelektronen an der Kathode verhindert wird. Dagegen breitet sich der Ionisierungsvorgang längs des Zählrohrdrahtes aus^{4), 7)}, bis dieser vollständig von einem Ionschlauch umhüllt ist und die Entladung abbricht. Die an die Elektroden abfliessenden Ionen und Elektronen verursachen im Zählrohrkreis einen Stromimpuls. Die Entstehung neuer Elektronen wird durch Prädissociation der vielatomigen Ionen an der Kathode verhütet⁵⁾.

II. Berechnung der Ausbreitungsgeschwindigkeit der Entladung längs des Drahtes.

Wenn wir das bisherige Bild über die Entladungsvorgänge präzisieren, kann die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Entladung längs des Drahtes berechnet werden. Hierzu gehen wir von folgender Vorstellung aus:

Ein Primärelektron wandert auf den Draht zu und erzeugt in dessen Nähe eine Elektronenlawine. Dabei entstehen angeregte Atome und Moleküle, die nach allen Seiten Lichtquanten aus-

¹⁾ A. TROST, Z. f. Phys., **105**, 408 (1937).

²⁾ M. E. ROSE und S. A. KORFF, Phys. Rev. **59**, 850 (1941).

³⁾ M. E. ROSE und W. E. RAMSEY, Phys. Rev. **61**, 504 (1942).

⁴⁾ H. G. STEVER, Phys. Rev. **61**, 38 (1942).

⁵⁾ S. A. KORFF und R. D. PRESENT, Phys. Rev. **65**, 274 (1944).

⁶⁾ A. G. M. VAN GEMERT, H. DEN HARTOG und F. A. MÜLLER, Physica **9**, 556 (1942).

⁷⁾ P. HUBER und F. ALDER, H. P. A. **18**, 232 (1945).

senden. Bei der Absorption dieser Lichtquanten im vielatomigen Gas entstehen Photoelektronen, die neue Elektronenlawinen und Lichtquanten bilden. Infolge der kleinen Reichweite der Lichtquanten bleibt dieser Entladungsvorgang an das Gebiet hoher Feldstärken gebunden und breitet sich längs des Drahtes immer weiter aus, bis er an den Enden des Zählrohrs ankommt. Die positive Raumladung des dabei entstehenden Ionenschlauchs setzt die Feldstärke am Draht soweit herab, dass keine neuen Ionisierungsstöße mehr stattfinden können.

Bei diesem Ausbreitungsmechanismus ist es wesentlich, dass die in der Elektronenlawine entstehenden Lichtquanten genügend Energie besitzen, um weitere Moleküle zu ionisieren. Wir wollen für das Folgende annehmen, dass die Zählrohrfüllung aus Argon mit einem Zusatz von Alkoholdampf bestehe. Die an Argon ausgelösten Lichtquanten besitzen Energien bis zu 15,7 eV. Da die minimale Ionisierungsarbeit für Alkohol 11,5 eV beträgt, kann ein Grossteil dieser Lichtquanten die Alkoholmoleküle ionisieren.

Zur Berechnung der Ausbreitungsgeschwindigkeit der Entladung denken wir uns den Vorgang in viele gleichartige Schritte zerlegt. Jeder Schritt ist folgendermassen charakterisiert: Das letzte von den Lichtquanten der primären Ionenlawine an den Alkoholmolekülen ausgelöste Elektron entsteht im Mittel in der Entfernung r_0 . Dieses Elektron erzeugt die nächste Ionenlawine, womit der neue Schritt beginnt. Die mittlere Dauer eines solchen Elementarprozesses bezeichnen wir mit ϑ , den in axialer Richtung zurückgelegten Weg mit x_0 . Die Ausbreitungsgeschwindigkeit v wird dann:

$$v = \frac{x_0}{\vartheta}. \quad (1)$$

Die in Gleichung (1) vorkommende mittlere Dauer eines Elementarprozesses setzt sich zusammen aus der mittleren Lebensdauer der angeregten Argonatome, der Ausbreitungszeit der Lichtquanten und der Laufzeit der Elektronen bis zur Bildung neuer angeregter Argonatome. Die mittlere Lebensdauer angeregter Argonatome kann aus der Strahlungsdämpfung abgeschätzt werden. Hiernach beträgt sie etwa $2 \cdot 10^{-10}$ sec. Demgegenüber darf die Ausbreitungszeit der Lichtquanten vernachlässigt werden. Die Laufzeit der Elektronen hängt von ihrer mittleren freien Weglänge, sowie von der Feldstärke ab. Eine Abschätzung liefert für die mittlere Geschwindigkeit der Elektronen in der Nähe des Drahtes etwa $4 \cdot 10^8$ cm/sec. Berücksichtigt man die kleine Reichweite der Lichtquanten, so ergibt sich für die Laufzeit der Elektronen etwa 10^{-9}

bis 10^{-10} sec. Sie darf also neben der Anregungszeit der Atome nicht vernachlässigt werden.

Zur Berechnung von x_0 denken wir uns eine zur Drahtachse senkrechte Ebene $B-C$ im Abstand x von der Elektronenlawine A gelegt (Fig. 1).

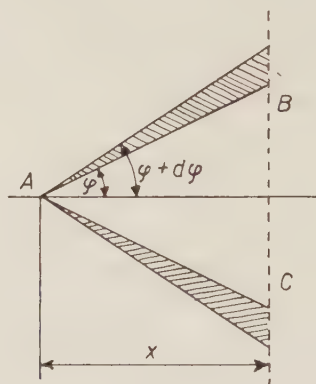


Fig. 1.

Die Anzahl dN der Lichtquanten, welche die Ebene $B-C$ durchdringen und mit der Achse einen Winkel zwischen φ und $\varphi + d\varphi$ einschliessen, ist gegeben durch

$$\begin{aligned} dN &= N_0 \cdot e^{-\mu x} \cdot \frac{2\pi r^2 \sin \varphi}{4\pi r^2} \cdot d\varphi, \\ &= \frac{N_0}{2} \cdot e^{\frac{-\mu x}{\cos \varphi}} \cdot \sin \varphi \cdot d\varphi. \end{aligned}$$

N_0 : mittlere Zahl der in einer Elektronenlawine gebildeten Lichtquanten,

μ : Absorptionskoeffizient des Füllgases für die Lichtquanten.

Ist x klein gegenüber dem Durchmesser des Zählrohrs, so erhalten wir für die gesamte Zahl N der Lichtquanten, die diese Ebene durchdringen:

$$N(x) = \int_0^{\pi/2} \frac{N_0}{2} \cdot e^{\frac{-\mu x}{\cos \varphi}} \cdot \sin \varphi \cdot d\varphi,$$

oder nach partieller Integration

$$N(x) = \frac{N_0}{2} [e^{-\mu x} + \mu x \cdot Ei(-\mu x)], \quad (2)$$

mit der Abkürzung:

$$Ei(-\mu x) = - \int_{\mu x}^{\infty} \frac{e^{-t}}{t} dt.$$

Bezeichnet β die Wahrscheinlichkeit zur Erzeugung eines Photoelektrons, so entstehen aus den N Lichtquanten $N \cdot \beta$ Elektronen. Die Front der Entladung wird sich in axialer Richtung bei einem Schritt um eine solche Strecke x_0 fortpflanzen, dass in dieser Distanz die N Lichtquanten gerade noch ein Elektron erzeugen können. Damit erhalten wir für x_0 die Bedingung: $N(x_0) \cdot \beta - 1$, oder

$$\frac{N_0 \beta}{2} \cdot [e^{-\mu x_0} + \mu x_0 \cdot Ei(-\mu x_0)] = 1. \quad (3)$$

Für die Berechnung von N_0 nehmen wir an, dass die Zahl der Lichtquanten proportional zur Zahl der Argonionen ist:

$$N_0 = \alpha \cdot Z_{\text{Arg}}. \quad (4)$$

α : Ausbeutefaktor für die Erzeugung von Lichtquanten.

Z_{Arg} : mittlere Zahl der Argonionen in einer einzelnen Elektronenlawine.

Zu dieser Annahme sind wir berechtigt, da infolge der grösseren Energie vor allem die Argon-Lichtquanten die Alkoholmoleküle ionisieren. Die Zahl der Argonionen kann in erster Näherung proportional zum Partialdruck des Argons p_{Arg} gesetzt werden:

$$Z_{\text{Arg}} = Z_{\text{tot}} \cdot \frac{p_{\text{Arg}}}{p_{\text{tot}}}. \quad (5)$$

Z_{tot} : Gesamtzahl der Ionen in einer einzelnen Elektronenlawine.

p_{tot} : Gesamtdruck der Zählrohrfüllung.

Betrachten wir (was im Gebiet hoher Feldstärken nahezu der Fall ist) die mittlere freie Weglänge für Ionisation λ_j als konstant, so kann Z_{tot} durch λ_j und den kritischen Radius r_c ausgedrückt werden:

$$Z_{\text{tot}} = 2 \frac{r_c - a}{\lambda_j}. \quad (6)$$

r_c stellt den Radius dar, bei dem die Feldstärke den für Stossionisation kritischen Wert E_c erreicht. a ist der Radius des Zähl drahtes. Aus der Potentialgleichung zweier konzentrischer Zylinder folgt für ein mit der Spannung V betriebenes Zählrohr vom Innendurchmesser b die Beziehung

$$r_c = \frac{V}{\ln b/a} \cdot \frac{1}{E_c}.$$

r_c wächst also linear mit der Zählrohrspannung an, so dass wir mit den Konstanten B und C nach (6) für Z_{tot}

$$Z_{\text{tot}} = C \cdot 2^{BV} \quad (6a)$$

erhalten. Damit geht (3) über in

$$\frac{\alpha \cdot \beta}{2} \cdot C \cdot 2^{BV} \cdot \frac{p_{\text{Arg}}}{p_{\text{tot}}} \left[e^{-\mu x_0} + \mu x_0 \cdot Ei(-\mu x_0) \right] = 1. \quad (3a)$$

Zur endgültigen Formulierung der Beziehung (3) führen wir den Alkoholdruck p ein:

$$p = p_{\text{tot}} - p_{\text{Arg}}.$$

Weiter ersetzen wir gemäss (1) x_0 durch $\vartheta \cdot v$ und berücksichtigen die Abhängigkeit des Absorptionskoeffizienten μ vom Alkoholdruck:

$$\mu = \mu_0 \cdot \frac{p}{p_0}.$$

Mit diesen Grössen erhalten wir schliesslich eine Beziehung zwischen der Ausbreitungsgeschwindigkeit v , dem Alkoholdruck p und der Zählrohrspannung V :

$$A \cdot 2^{BV} (p_{\text{tot}} - p) \cdot \left[e^{-\mu_0 \frac{p}{p_0} v \vartheta} + \mu_0 \frac{p}{p_0} v \vartheta \cdot Ei\left(-\mu_0 \frac{p}{p_0} v \vartheta\right) \right] = 1, \quad (3b)$$

wobei alle konstanten Faktoren in A zusammengefasst sind.

III. Berechnung des Stromimpulses einer Zählrohrentladung.

Die Ausbreitung der Entladung im selbstlöschenden Zählrohr längs des Drahtes hat einen bestimmten Stromimpuls zur Folge. Dieser Impuls wird durch die an die Kathode abfliessende positive Raumladung bewirkt. Der Beitrag der Elektronen darf vernachlässigt werden, da sie so nahe am Draht entstehen, dass sie nur einen sehr kleinen Strom zur Folge haben. Ebenso wenig braucht der Beitrag der Elektronen in der Primärlawine berücksichtigt zu werden, weil der entsprechende Stromimpuls zu kurz ist, um vom Verstärker noch aufgelöst zu werden.

Die vor der Entladung am Zählrohr pro cm gebundene Elektrizitätsmenge Q_0 ist mit der Zählrohrspannung V verknüpft durch die Beziehung:

$$V = \frac{Q_0}{2 \pi \epsilon_0} \cdot \ln b/a. \quad (7)$$

$$\epsilon_0: \text{Influenzkonstante} = 8,86 \cdot 10^{-14} \frac{\text{Amp.} \cdot \text{sec}}{\text{Volt} \cdot \text{cm}}.$$

Während der Entladung befindet sich zwischen Draht und Wand die positive Raumladung q pro cm. Beträgt ihr Abstand von der Drahtachse r und befindet sich auf dem Draht pro cm die Ladung Q , so erhält man an Stelle der Gleichung (7):

$$V = \frac{Q}{2\pi\epsilon_0} \ln b/a + \frac{q}{2\pi\epsilon_0} \ln b/r. \quad (8)$$

Daraus folgt für Q

$$Q = \frac{2\pi\epsilon_0 V}{\ln b/a} - q \frac{\ln b/r}{\ln b/a}. \quad (8a)$$

Bei konstant gehaltener Zählrohrspannung ergibt sich durch die Abwanderung der Raumladung pro cm der Strom I^* :

$$I^* = \frac{dQ}{dt} = \frac{q}{\ln b/a} \cdot \frac{dr/dt}{r}. \quad (9)$$

Die Geschwindigkeit dr/dt , mit der sich die Raumladung an die Kathode bewegt, kann durch die Ionenbeweglichkeit ϱ und die Feldstärke E_r am Ort der Raumladung ausgedrückt werden:

$$dr/dt = \varrho \cdot E_r. \quad (10)$$

E_r setzt sich zusammen aus dem Feld der Ladung Q und dem Eigenfeld der Raumladung. Dieses kann bei unendlich dünner Raumladungsschicht ersetzt werden durch das Feld einer Ladung $q/2$ auf dem Draht:

$$E_r = \frac{Q}{2\pi\epsilon_0 r} + \frac{q/2}{2\pi\epsilon_0 r}. \quad (11)$$

Mit Hilfe von (7) und (8) folgt daraus:

$$E_r = \frac{Q_0}{2\pi\epsilon_0 r} + \frac{q}{2\pi\epsilon_0 r} \left(\frac{1}{2} - \frac{\ln b/r}{\ln b/a} \right). \quad (11a)$$

Die Integration von (10) führt mit diesem Ausdruck für E_r auf den Integrallogarithmus, der für eine weitere Berechnung umständlich ist. Da jedoch die Feldstärke und damit auch der Strom mit wachsendem r rasch abnehmen, sind für die Berechnung nur die kleinen r -Werte massgebend. Wir ersetzen daher in Gleichung (11a) $\ln b/r$ durch $\ln b/a$. Dann geht (11a) über in:

$$E_r = \frac{Q_0}{2\pi\epsilon_0 r} - \frac{1}{2} \frac{q}{2\pi\epsilon_0 r}, \quad (11b)$$

und das Integral von (10) lautet mit dieser Näherung:

$$t = \int_a^r \frac{2\pi\epsilon_0 r \cdot dr}{\varrho(Q_0 - q/2)} = \frac{2\pi\epsilon_0}{\varrho(2Q_0 - q)} (r^2 - a^2). \quad (10a)$$

Lösen wir diesen Ausdruck nach r auf und bilden noch die zeitliche Ableitung, so erhalten wir schliesslich aus (9):

$$I^* = \frac{A}{t + \tau} \quad (12)$$

mit

$$A = \frac{q}{\ln b/a} ; \quad \tau = \frac{2 \pi \varepsilon_0 a^2}{c \cdot (2Q_0 - q)} .$$

Vom Strom I^* gelangen wir durch Integration längs des Zähl-
drahtes (= x -Achse) zum Gesamtstrom I , wobei die konstante Ausbreitungsgeschwindigkeit der Entladung zu berücksichtigen ist:

$$I(t) = \int_0^t I^* \left(t - \frac{x}{v} \right) dx . \quad (13)$$

Beginnt die Entladung im Abstand d vom Drahtende, so breitet sich der Ionenschlauch gleichzeitig nach beiden Seiten aus, und der Gesamtstrom enthält zwei Anteile. Bezeichnen wir noch mit l die Länge des Zähl drahtes, so erhalten wir ganz allgemein für den Strom während einer Zählrohrentladung:

a) für die Zeit $t \leq \frac{d}{v}$, $\left(\frac{d}{v} = \text{Ausbreitungszeit des Ionenschlauchs} \right)$
bis zum näheren Zählrohrende

$$I = 2 \cdot A \cdot v \cdot \ln \frac{t + \tau}{\tau} ;$$

b) für die Zeit $\frac{d}{v} \leq t \leq \frac{l-d}{v}$, $\left(\frac{l-d}{v} = \text{Ausbreitungszeit bis zum} \right)$
entfernteren Zählrohrende

$$I = A \cdot v \left[\ln \frac{t + \tau}{\tau} + \ln \frac{t + \tau}{t - \frac{d}{v} + \tau} \right] \text{ und} \quad (14)$$

c) für die Zeit $t \geq \frac{l-d}{v}$

$$I = A \cdot v \left[\ln \frac{t + \tau}{t - \frac{d}{v} + \tau} + \ln \frac{t + \tau}{t - \left(\frac{l-d}{v} \right) + \tau} \right] .$$

Daraus ergeben sich für den Strom die beiden Spezialfälle:

1. Entladungsanfang am Rand des Zählrohrs ($d = 0$)

$$\begin{aligned} t &\leq \frac{l}{v} & I &= A \cdot v \cdot \ln \frac{t + \tau}{\tau} \\ t &\geq \frac{l}{v} & I &= A \cdot v \cdot \ln \frac{t + \tau}{t - \frac{l}{v} + \tau} , \end{aligned} \quad (14a)$$

2. Entladungsanfang in der Mitte des Zählrohrs ($d = \frac{l}{2}$)

$$\begin{aligned}
 t \leq \frac{l}{2v} & \quad I = 2 \cdot A \cdot v \cdot \ln \frac{t + \tau}{\tau} \\
 t \geq \frac{l}{2v} & \quad I = 2 \cdot A \cdot v \cdot \ln \frac{t + \tau}{t - \frac{l}{2v} + \tau} .
 \end{aligned} \tag{14b}$$

IV. Experimentelle Bestimmung des Absorptionskoeffizienten μ_0 .

1. Versuchsanordnung.

Für das quantitative Verständnis des Entladungsmechanismus ist die Kenntnis des Absorptionskoeffizienten μ_0 notwendig. Die Bestimmung von μ_0 kann mit einer ähnlichen Versuchsanordnung, wie sie GREINER¹⁾ zum Nachweis der U.V.-Photonen verwendet hat, erfolgen. In unserer Anordnung (Fig. 2) bedeuten *A* und *B*

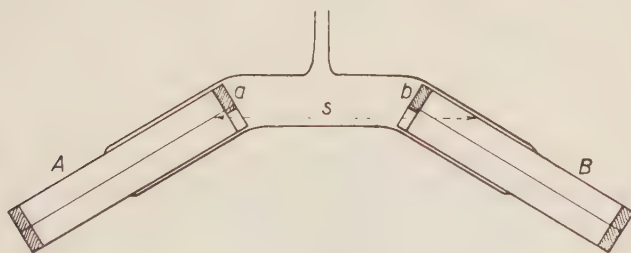


Fig. 2.

Doppelzählrohr zur Bestimmung des Absorptionskoeffizienten.

zwei Zählrohre, die durch ein Glasrohr miteinander verbunden sind. *a* und *b* sind zwei halbkreisförmige Scheiben aus Bernstein, die zur Befestigung des Zähl drahtes dienen und gleichzeitig eine Öffnung für den Durchtritt von Lichtquanten freigeben. Der Weg *s*, den die Lichtquanten beim Übergang vom einen Zählrohr ins zweite zurücklegen, ist durch diese Anordnung auf etwa 10% genau bestimmt ($s = 11 \pm 1$ cm). Enthält die Zählrohrfüllung keinen vielatomigen Gaszusatz, so wird bei jedem Entladungsstoss durch die gebildeten Lichtquanten im zweiten Zählrohr ebenfalls eine Entladung ausgelöst. Sind beide Zählrohre in Koinzidenz geschaltet, so bewirkt jede Entladung eine Koinzidenz. Durch den Zusatz von Alkoholdampf wird ein Teil der Lichtquanten absorbiert, und

¹⁾ E. GREINER, Z. f. Phys., **81**, 543 (1933).

mit zunehmendem Alkoholdruck wird schliesslich nicht mehr jede Entladung eine Koinzidenz verursachen.

Bezeichnen wir mit Ausbreitungswahrscheinlichkeit W das Verhältnis:

$$W = \frac{\text{Anzahl Koinzidenzen}}{\text{Anzahl Einzimpulse von A} + \text{Einzimpulse von B}}$$

so erhält man durch eine Verallgemeinerung des GREINERSchen Ansatzes

$$W = 1 - \left(1 - \frac{1}{\gamma} \cdot e^{-\mu_0 \frac{p}{p_0} \cdot s} \right)^N, \quad (15)$$

wo γ die zur Auslösung eines Photoelektrons notwendige mittlere Zahl von Lichtquanten bedeutet, während N die mittlere Zahl der Lichtquanten angibt, die ohne absorbierendes Gas vom einen Zählrohr ins zweite gelangen können.

Wird $\frac{1}{\gamma} \cdot e^{-\mu_0 \frac{p}{p_0} \cdot s}$ klein gegenüber 1, so können wir (15) entwickeln und erhalten:

$$W = \frac{N}{\gamma} \cdot e^{-\mu_0 \frac{p}{p_0} \cdot s}. \quad (16)$$

Bestimmt man den experimentellen Zusammenhang zwischen der Ausbreitungswahrscheinlichkeit W und dem Alkoholdruck p , so lässt sich mittels der Gleichung (16) der Absorptionskoeffizient μ_0 ermitteln. Aus zwei Wertepaaren der experimentellen Kurve erhalten wir nach Eliminierung von N/γ :

$$\mu_0 = \frac{p_0 \cdot \ln W_1/W_2}{s \cdot (p_2 - p_1)}. \quad (17)$$

Bei der Messung der Ausbreitungswahrscheinlichkeit W zeigte es sich, dass reines Argon als Füllgas ungeeignet war, da bei den erforderlichen kleinen Alkoholdrucken die Zählrohre kein ausgeprägtes Plateau mehr besitzen. Es wurde daher eine Argon-Luft-Mischung im Verhältnis 1:3 verwendet. Diese ergab für die getroffene Anordnung bei einem Druck von 80 mm Hg eine Ausbreitungswahrscheinlichkeit $W = 1$. Ein Alkoholdampfzusatz von einigen Zehntel mm Hg genügte, um W auf verschwindend kleine Werte zu bringen. Die Einstellung dieser kleinen Drucke erfolgte durch Expansion einer bestimmten Alkoholmenge auf ein Vielfaches des ursprünglichen Volumens. So konnte der Alkoholdruck auf einige Hundertstel mm Hg genau bestimmt werden.

2. Messergebnis.

Fig. 3 gibt den experimentell bestimmten Zusammenhang zwischen Alkoholdruck und Ausbreitungswahrscheinlichkeit wieder.

Zur Berechnung von μ_0 benützen wir die beiden Punkte P_1 und P_2 und erhalten mit der Beziehung (17):

$$\mu_0 = 640 \text{ cm}^{-1}. \quad (18)$$

Dieser Zahlenwert bedeutet, dass in einem Zählrohr mit einem Zusatz von 15 mm Hg Alkohol die Zahl der Lichtquanten nach 0,8 mm

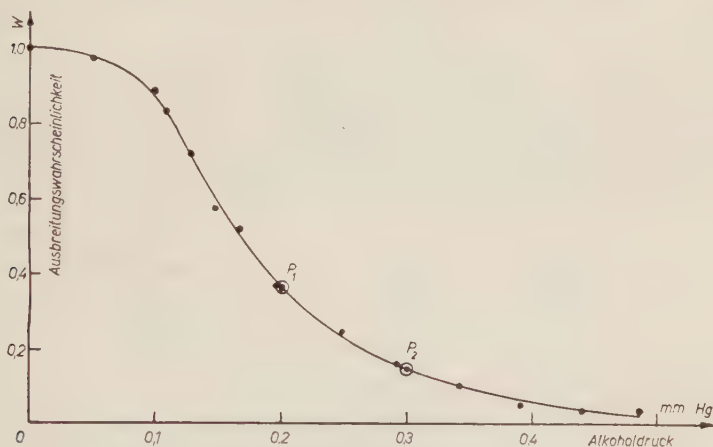


Fig. 3.

Bestimmung des Absorptionskoeffizienten von Alkohol.

Weg auf $1/e$ des ursprünglichen Wertes gefallen ist. Da die Lichtquanten in unmittelbarer Nähe des Drahtes entstehen, sind sie in 2 mm Entfernung vom Draht praktisch vollkommen absorbiert. Dies erklärt die Ergebnisse der STEVERschen Untersuchungen mit dem Glasperlen-Zählrohr¹⁾.

V. Bestimmung der Ausbreitungsgeschwindigkeit des Ionenschlauchs mit dem Blendenzählrohr²⁾.

1. Versuchsanordnung.

Für die Ausbreitung des Ionenschlauchs längs des Drahtes ist es wesentlich, dass die elektrische Feldstärke am Draht stets grösser als die kritische Feldstärke ist. Wird dieser Wert unter-

¹⁾ H. G. STEVER, Phys. Rev. **61**, 38 (1942).

²⁾ P. HUBER, F. ALDER und E. BALDINGER, H. P. A. **19**, 204 (1946).

schritten, so kann keine Stossionisation mehr stattfinden und der Ionenschlauch breitet sich nicht mehr weiter aus. Diese Tatsache ermöglicht uns, die Ausbreitungsgeschwindigkeit des Ionenschlauchs mit dem sogenannten Blendenzählrohr zu bestimmen (Fig. 4).

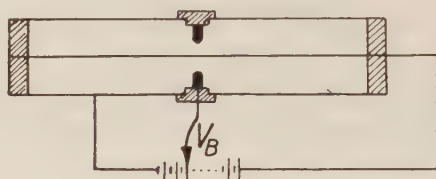


Fig. 4.
Blendenzählrohr.

Mit Hilfe der isolierten Lochblende kann beim Blendenzählrohr das elektrische Feld zwischen Blende und Draht variiert werden. Durch eine Änderung der Blendenspannung ist es möglich, die

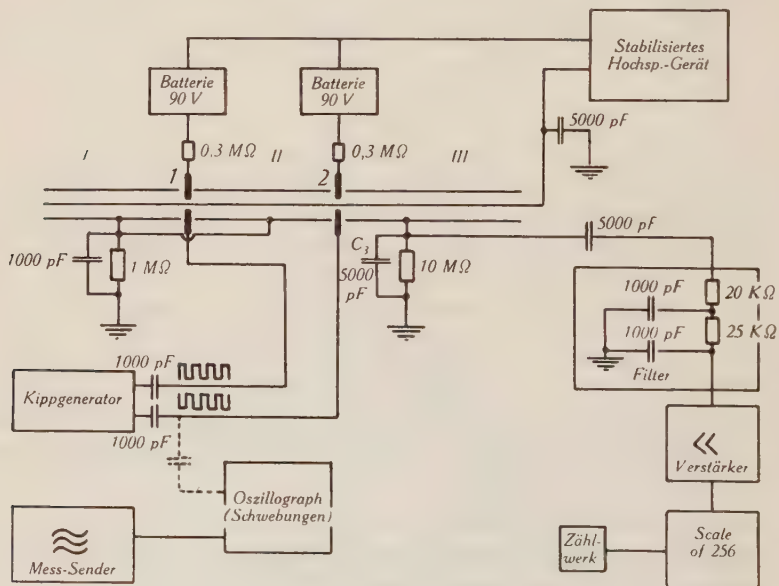


Fig. 5.

Messanordnung zur Bestimmung der Ausbreitungsgeschwindigkeit des Ionenschlauches.

Blende für die Entladung zu sperren, bzw. durchlässig zu machen. In unserer Anordnung genügt im kritischen Spannungsgebiet eine Änderung von 60 Volt, um vom Durchlass- in den Sperrbereich zu kommen.

Die Messung der Ausbreitungsgeschwindigkeit des Ionenschlauchs erfolgt nach dem gleichen Prinzip wie die Bestimmung der Lichtgeschwindigkeit nach FIZEAU (Fig. 5). Hierzu wird ein Zählrohr mit zwei Blenden 1 und 2 versehen, die unabhängig voneinander gesteuert werden können. Ein Kippgenerator liefert äquidistante Rechteckimpulse, welche die Blenden im Gegenteil öffnen und schliessen. Um mit einer möglichst kleinen Amplitude der Kippspannung auszukommen, wird die Blendenspannung durch Batterien so eingestellt, dass sich die Blenden bei Abwesenheit der Kippspannung im mittleren Übergangsgebiet befinden.

Die hohe Kippfrequenz (bis 1 MHz) und die relativ grosse Kapazität zwischen Blende und Kathode verlangen die Kathode kapazitiv zu erden, da sonst der Zählrohrspannung eine störende Kippspannung überlagert ist. Die Impulse des Zählrohrs am Ableitwiderstand sind noch kleiner als die überlagerte Kippschwingung, so dass diese mit einem Filter gedämpft werden muss.

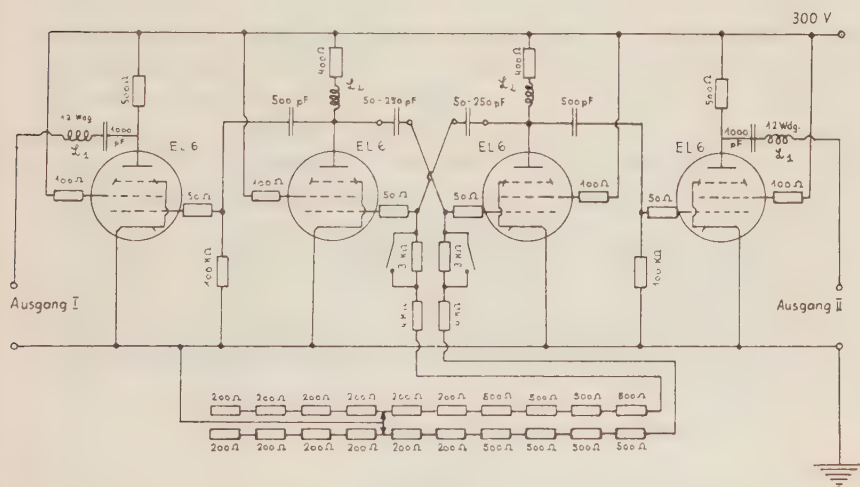


Fig. 6.
Kippgenerator.

Ein Multivibrator (Fig. 6) erzeugt die rechteckigen Steuerimpulse, welche über zwei übersteuerte Endröhren den Blenden zugeführt werden. Zur Verbesserung der Flankensteilheit befinden sich in den Anodenzuleitungen der Multivibratorröhren, sowie in den Ausgangsleitungen Zusatzinduktivitäten. Um hochfrequente Störschwingungen in den Endröhren zu vermeiden, liegen in den Gitter-, bzw. Schirmgitterzuleitungen kleine Dämpfungswider-

stände. Die Änderung der Kippfrequenz geschieht durch Änderung der Zeitkonstante des Multivibrators.

Zur Frequenzmessung wird die Spannung des Kippgenerators mit derjenigen eines geeichten Messenders verglichen. Dazu beobachtet man die Schwebungen der Frequenz des Messenders mit der Grundfrequenz der Kippspannung.

2. Messergebnis.

Alle Entladungen, die im Teil I des Blendenzählrohrs mit einem Präparat ausgelöst werden und ungehindert durch die beiden Blenden hindurchtreten können, erzeugen im Teil III Impulse, die verstärkt und gezählt werden. Erhöht man die Steuerfrequenz von Null ausgehend, so nimmt die Zahl der Registrierungen zu. Sie erreicht ein Maximum, wenn die Laufzeit des Ionenschlauches im mittleren Teil des Zählrohrs gerade gleich der halben Schwingungsdauer T_0 der Kippfrequenz f_0 ist. Dann gelangen sämtliche Impulse die die Blende 1 passieren konnten auch durch die Blende 2. Bei Erhöhung der Kippfrequenz nimmt die Zahl der registrierten Impulse wieder ab und wird bei $f_1 = 2 \cdot f_0$ minimal, da nun die Laufzeit des Ionenschlauches gleich der Schwingungsdauer der Kippfrequenz ist, so dass für jede durch die Blende 1 gelangende Entladung die Blende 2 bei ihrer Ankunft geschlossen ist.

Eine weitere Steigerung der Kippfrequenz liefert abwechselungsweise neue Maxima und Minima, und zwar wird für die Frequenzen $f = n \cdot f_0$ die Zahl der Impulse ein Maximum für ungerades n , ein Minimum für gerades n .

Bezeichnen wir die Frequenz des ersten Maximums mit f_0 und die Laufzeit des Ionenschlauches zwischen den beiden Blenden mit t_0 , so gilt:

$$t_0 = \frac{T_0}{2} = \frac{1}{2 \cdot f_0}. \quad (19)$$

Ist d der Abstand der beiden Blenden, so wird die Ausbreitungsgeschwindigkeit

$$v = \frac{d}{t_0} = 2 \cdot f_0 \cdot d. \quad (20)$$

Eine Messkurve ist in Fig. 7 wiedergegeben. Der sägezahnartige Verlauf der Kurve ist durch die Rechteckform der Kippimpulse bedingt. Die Flankensteilheit der Kippschwingungen ist konstant, so dass mit zunehmender Frequenz immer grössere Abweichungen von der idealen Rechteckform auftreten, was eine Verkleinerung der Maxima zur Folge hat. Aus den Abständen der Minima und

Maxima findet man für die Frequenz f_0 190 kHz. Mit dem Blendenabstand von 22 cm wird daher die Ausbreitungsgeschwindigkeit v :

$$v = (8,35 \pm 0,05) \cdot 10^6 \text{ cm/sec.}$$

Da sowohl der Blendenabstand als auch die Kippfrequenz sehr genau gemessen werden können, sind die nach dieser Methode erhaltenen Resultate mit nur kleinen Fehlern behaftet.

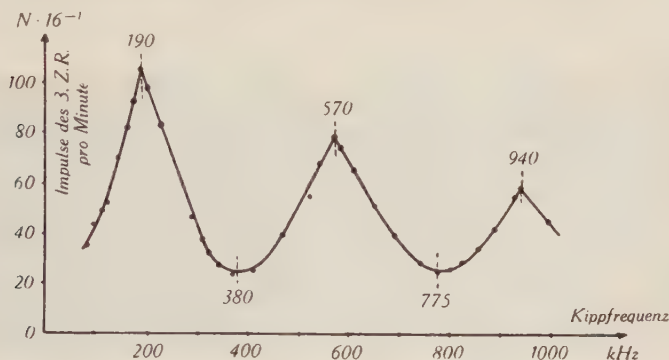


Fig. 7.

Impulszahl im Teil III als Funktion der Kippfrequenz.

Zählrohrfüllung: 16 mm Alkohol, 64 mm Argon; Zählrohrspannung 1100 Volt;
Zählrahdurchmesser 0,015 cm; Zylinderdurchmesser 1,8 cm.

Im nächsten Abschnitt wird noch eine einfachere Methode zur Bestimmung der Ausbreitungsgeschwindigkeit des Ionenschlauches angegeben. Die Druck- und Spannungsabhängigkeit der Ausbreitungsgeschwindigkeit werden wir daher erst später untersuchen.

VI. Experimentelle Bestimmung der Impulsform¹⁾.

1. Versuchsanordnung.

Zur direkten Prüfung der Theorie über den Stromverlauf von Zählrohrimpulsen ist die Messung der Impulsform erforderlich. Eine in Fig. 8 wiedergegebene Schaltung ist hierzu brauchbar. Die Impulse werden an einem zum Zählrohr in Serie geschalteten Widerstand von 500 Ohm abgenommen. Da der Anstieg des Impulses von der Größenordnung von 10^{-6} sec ist, darf die Zeitkonstante RC

¹⁾ P. HUBER, F. ALDER, E. BALDINGER und F. METZGER, H. P. A. **19**, 207 (1946).

für eine formgetreue Übertragung den Wert 10^{-7} sec nicht überschreiten. Zur Verstärkung dient ein Breitbandverstärker mit folgenden Daten:

Bandbreite 10 Hz bis 13 MHz
 Verstärkung 7,5 Neper
 Gruppenlaufzeit (bis ca. 10 MHz const.) $8 \cdot 10^{-8}$ sec
 Max. Ausgangsspannung bei kurzzeitigen Impulsen 30 Volt.

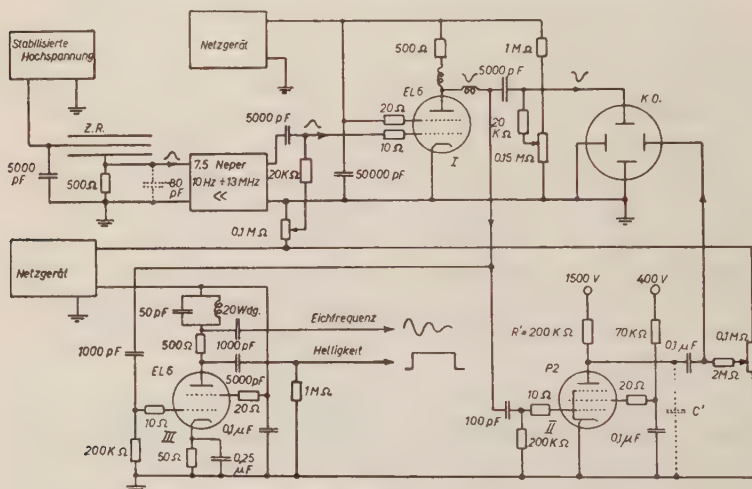


Fig. 8.

Messanordnung zur Bestimmung der Impulsform.

Um bei Benützung der Philips Oszillographenröhre DG 9/3 mit 5000 V Nachbeschleunigung ein genügend grosses Bild zu erhalten, wird eine Endstufe verwendet, die etwa 80 Volt Ausgangsspannung liefert. Die zu untersuchenden Impulse lösen die Zeitablenkung des Oszillographen aus. Durch jeden verstärkten Zählrohrimpuls wird die Röhre II gesperrt und die Schaltkapazität C' über den Widerstand R' aufgeladen. Die Spannung an der Kapazität C' steuert die Zeitablenkung, die bei ca. 5% der maximalen Impulshöhe einsetzt. Eine Auflösung von 10^{-7} sec, die noch erreicht werden muss, erfordert einen maximalen Anstieg der Ablenkspannung von ca. 10^8 Volt/sec.

Die Röhre III wird ebenfalls durch die Zählrohrimpulse gesperrt. Der an ihrer Anodenimpedanz entstehende positive Rechteckimpuls dient zur Hellsteuerung der Kathodenstrahlröhre. Zur Eichung der Zeitablenkung wird ein in der Anodenleitung der Röhre III liegender

Parallelschwingkreis bekannter Eigenfrequenz durch den plötzlich aussetzenden Anodenstrom zu einer gedämpften Schwingung angeregt. Die Phase der erzeugten Schwingung ist so synchron mit derjenigen der Zeitablenkung.

2. Messergebnis.

In Fig. 9 sind drei typische Impulsformen sowie eine Eichkurve wiedergegeben. Die Aufnahmen wurden gewonnen, indem am Zählrohr an drei verschiedenen Stellen α -Teilchen eingestrahlt werden

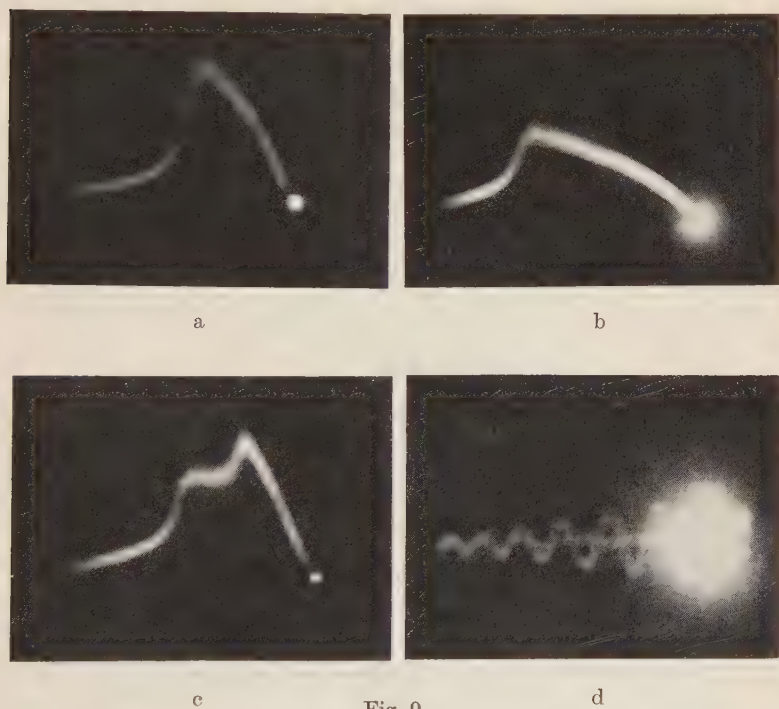


Fig. 9.

Experimentell bestimmte Impulsformen.

a: in der Mitte eingestrahlt; b: am Rand eingestrahlt; c: $l/3$ eingestrahlt;
d: Eichkurve für Zeitablenkung.

Zeitablenkung von rechts nach links.

konnten. Zum direkten Vergleich der experimentellen mit den errechneten Kurven muss die Zeitablenkung mit Hilfe der Eichkurve entzerrt werden, was für die drei Kurven der Fig. 10 ausgeführt wurde. Die Stromeichung der Entladung erfolgte durch Bestimmung des Verstärkungsfaktors der Schaltung, sowie der

Ablenkempfindlichkeit der Kathodenstrahlröhre. Zur zahlenmässigen Auswertung der errechneten Beziehungen müssen in den Formeln (14), (14a) und (14b) die Konstanten $A \cdot v$ und τ bekannt sein. Ihre Bedeutung ist in (12) angegeben. Eine Berechnung ist jedoch nicht möglich, da die in (12) auftretenden Grössen q und

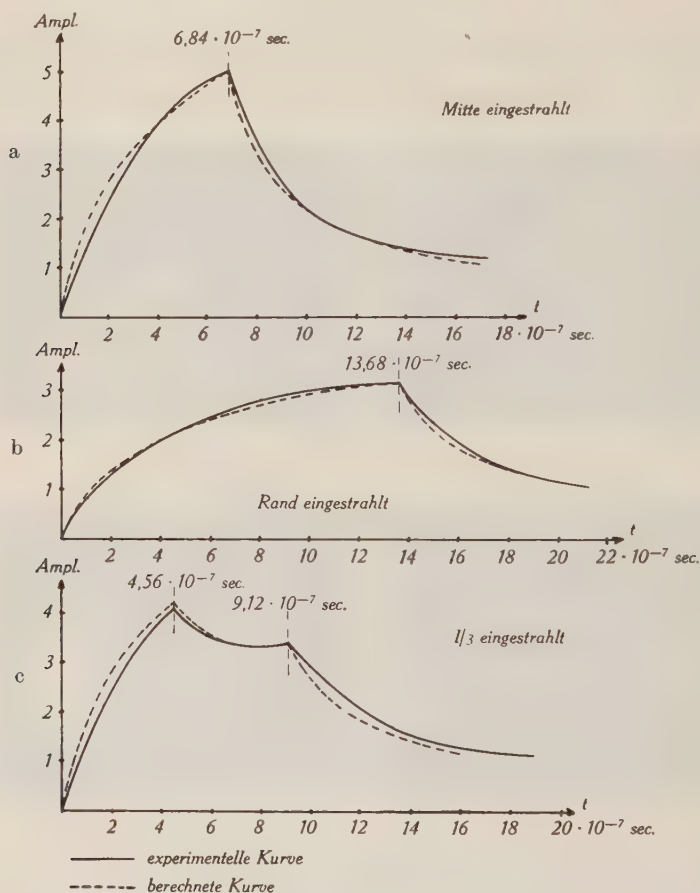


Fig. 10 a—c.

Vergleich zwischen experimentell bestimmter und berechneter Impulsform.
Zählrohrdaten wie bei Fig. 7.

q nur ungenau bekannt sind. Es ist daher notwendig, τ und $A \cdot v$ aus den experimentellen Kurven zu bestimmen. Für die Auswertung wurde die Kurve 10a benützt. Da die entsprechende Beziehung (14b), unter Verwendung zweier Wertepaare I und t , nicht nach τ

aufgelöst werden kann, bilden wir die zeitliche Ableitung von (14b):

$$\dot{I} = 2 \cdot A \cdot v \frac{1}{t + \tau} \quad (21)$$

und entnehmen der Kurve 10a (ausgezogene Kurve) die Neigung des Stromanstiegs in zwei Punkten. τ kann nun berechnet werden und wir erhalten:

$$\tau = 0,72 \cdot 10^{-7} \text{ sec} \quad (22)$$

$A \cdot v$ ergibt sich durch Angleichen der theoretischen Kurve an die experimentelle im Strommaximum:

$$A \cdot v = 298 \mu\text{Amp.} \quad (23)$$

Die Ausbreitungsgeschwindigkeit v ist aus Messungen mit dem Blendenzählrohr bekannt. Die Kenntnis der Impulsform gibt uns noch eine weitere Bestimmungsmöglichkeit von v . Die Anstiegsdauer des Impulses entspricht z. B. bei Einstrahlungsbeginn der Entladung in der Mitte der Ausbreitungszeit des Ionenschlauches über die halbe Zählrohlänge. Aus Kurve 10a bestimmt man ($l = 8,5 \text{ cm}$; $t = 6,84 \cdot 10^{-7} \text{ sec}$):

$$v = 12,44 \cdot 10^6 \text{ cm/sec.} \quad (24)$$

Mit den Zahlenwerten von $A \cdot v$, τ und v lässt sich der theoretische Verlauf der Impulsformen berechnen. In Fig. 10a—10c sind die den experimentellen entsprechenden theoretischen Kurven gestrichelt eingezeichnet. Die Übereinstimmung kann als sehr gut bezeichnet werden.

Mit den Werten (22) und (23) für τ und $A \cdot v$ können wir ferner die Konstanten q und ϱ berechnen. Benützen wir zur Eliminierung der Grösse Q_0 die Beziehung (7), so erhalten wir für die Zählrohrspannung 1150 Volt und die Zählrohrdimensionen $a = 7,5 \cdot 10^{-3} \text{ cm}$; $b = 1,8 \text{ cm}$:

$$\begin{aligned} q &= 2,29 \cdot 10^{-10} \text{ Clb/cm,} \\ \varrho &= 11,2 \text{ cm}^2/\text{Volt sec.} \end{aligned}$$

Der so erhaltene Wert für ϱ steht in guter Übereinstimmung mit den Angaben von Engel und Steenbeck¹⁾. Bei den in Frage kommenden Feldstärken wird die Ionenbeweglichkeit für Argon von 80 mmHg Druck zu $\varrho = 12,5 \text{ cm}^2/\text{Volt sec}$ angegeben.

¹⁾ ENGEL und STEENBECK, Elektrische Gasentladungen, Verlag Springer, Berlin 1932, S. 191.

3. Ausbreitungsgeschwindigkeit der Zählrohrentladung in Abhängigkeit von Druck und Spannung.

Im vorigen Abschnitt wurde gezeigt, dass sich aus der Lage der Maxima des Stromimpulses die Ausbreitungsgeschwindigkeit bestimmen lässt. Wir wollen zunächst die nach dieser Methode erhaltenen Ergebnisse mit den am Blendenzählrohr gewonnenen vergleichen. Wird die Impulsform direkt am Blendenzählrohr aufgenommen, so ist eine Übereinstimmung der Betriebsdaten gewährleistet, und die gemessenen Geschwindigkeiten müssen gleich gross sein. Zur Aufnahme der Impulsform ist es zweckmässig, noch einen der durch die Blenden entstehenden kurzen Impulse zum eigentlichen Zählrohrimpuls hinzuzuzählen, so dass die gesamte Messlänge für beide Methoden gleich wird. Wir verbinden daher eine der beiden Blenden kapazitiv mit dem mittleren Zählrohrstück. Je nachdem die Entladung zuerst die angekoppelte Blende oder das Mittelstück II des Zählrohrs durchläuft, wird vor oder nach dem Hauptimpuls der kurze Blendenimpuls auftreten (Fig. 11).

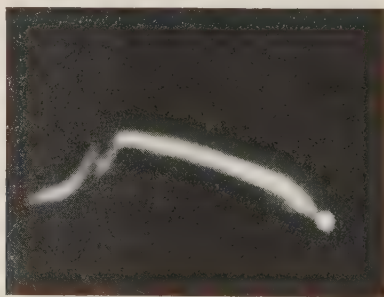


Fig. 11.

Impulsform, am Blendenzählrohr aufgenommen.
Blendenimpuls nach dem Hauptimpuls.

Geschwindigkeitsmessungen bei verschiedenen Füllungen und Zählrohrspannungen nach beiden Methoden ergaben Übereinstimmung innerhalb der Fehlergrenzen.

Beispiel einer Messung:

Zählrohrfüllung: 67 mm Hg Argon + 13 mm Hg Alkohol,

Zählrohrspannung: 1050 Volt.

Nach der Blendenmethode: $v = 8,80 \cdot 10^6$ cm/sec.

Aus der Impulsform: $v = 8,75 \cdot 10^6$ cm/sec.

Nachdem beide Methoden gleichwertig sind, ist es zweckmässig, die Ausbreitungsgeschwindigkeit für die Untersuchung der Druck- und Spannungsabhängigkeit der Impulsform zu entnehmen. Das

Ergebnis der Messungen ist in Fig. 12 wiedergegeben. Der Gesamtdruck im Zählrohr betrug stets 80 mmHg, während der Druck des Alkoholzusatzes von ca. 10 bis 20 mmHg variiert wurde. Mit zunehmender Zählrohrspannung wird bei gleichbleibender Füllung die Ausbreitungsgeschwindigkeit immer grösser. Dies ist zu erwarten, da gleichzeitig mit der Spannung auch die Zahl der ausgelösten Lichtquanten anwächst. Je mehr Lichtquanten aber entstehen, desto grösser wird der in einem Elementarprozess zurückgelegte Schritt längs des Drahtes. Da die Dauer eines solchen Prozesses in erster Näherung ungeändert bleibt, wird die Ausbreitungsgeschwindigkeit zunehmen.

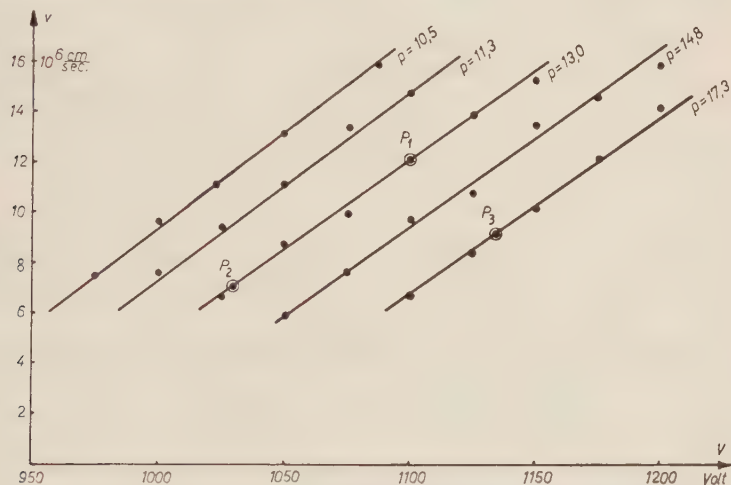


Fig. 12.

Druck- und Spannungsabhängigkeit der Ausbreitungsgeschwindigkeit.

Weiter entnehmen wir aus Fig. 12, dass die Ausbreitungsgeschwindigkeit mit wachsendem Alkoholdruck bei konstanter Zählrohrspannung abnimmt. Dies ist eine Folge der stärkeren Absorption der Lichtquanten im Alkoholdampf.

Um das Ergebnis dieser Messung mit der in Abschnitt II gegebenen Theorie vergleichen zu können, müssen zuerst die in Gleichung (3b) auftretenden Grössen ermittelt werden. Die Werte von μ_0 , p_0 und p_{tot} sind bekannt: $\mu_0 = 640 \text{ cm}^{-1}$ (18), $p_0 = 760 \text{ mmHg}$ und $p_{\text{tot}} = 80 \text{ mmHg}$. Die übrigen drei Konstanten A , B und ϑ , über deren Werte nichts Genaues ausgesagt werden kann, bestimmen wir durch Anschluss an die experimentellen Kurven. Benützen wir die drei Punkte P_1 , P_2 und P_3 (Fig. 12), so finden wir:

$$\vartheta = 1,2 \cdot 10^{-9} \text{ sec}, \quad A = 1,85 \cdot 10^{-2} \text{ mmHg}^{-1}, \quad B = 3,2 \cdot 10^{-3} \text{ Volt}^{-1}. \quad (25)$$

Der Wert für ϑ , der die Anregungszeit der Argonatome und die Laufzeit der Elektronen enthält, stimmt mit unseren Abschätzungen im Abschnitt II überein. Die physikalische Bedeutung von B kann aus (6a) abgelesen werden. B stellt den reziproken Wert derjenigen Spannungserhöhung am Zählrohr dar, die eine Verdopplung der Ladung in der primären Lawine bewirkt. Zur Kontrolle des Wertes für B wird mit Hilfe eines linearen Verstärkers die Charakteristik eines α -Zählrohrs im Proportionalbereich ausgemessen. Fig. 13 zeigt die Impulshöhe A als Funktion der angelegten Spannung. Bis zu einem kritischen Wert V_c arbeitet das Zählrohr als Ionisationskammer; dann folgt der Proportionalbereich. Die

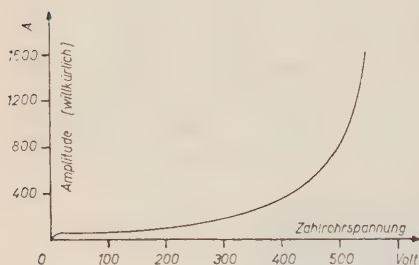


Fig. 13.

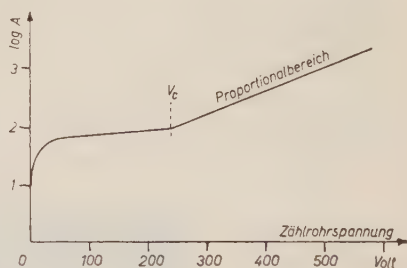
Charakteristik eines α -Zählrohrs.

Fig. 14.

Proportionalbereich eines α -Zählrohrs.

Impulshöhe im Proportionalbereich ist darstellbar durch die Beziehung:

$$J = \text{const. } 2^{BV}. \quad (26)$$

Daraus folgt für die Grösse B :

$$B = \frac{d(\ln J)}{dV} / \log 2. \quad (26a)$$

Aus Fig. 14, wo der Logarithmus der Impulshöhe aufgetragen ist, findet man für $B = 5,6 \cdot 10^{-3} \text{ Volt}^{-1}$, und damit grössenordnungsmässig Übereinstimmung mit dem Wert aus (25).

Die experimentell ermittelten Konstanten gestatten nun, mit Gleichung (3b) die Druck- und Spannungsabhängigkeit der Ausbreitungsgeschwindigkeit zu bestimmen. In Fig. 15 sind die berechneten und gemessenen Kurven aufgezeichnet. Die Übereinstimmung von Rechnung und Messung ist in Anbetracht der komplizierten Vorgänge und der bei der Herleitung von (3b) gemachten Vereinfachungen recht gut. Eine Verbesserung wäre z. B. denkbar, wenn λ_j nicht mehr als Konstante betrachtet würde. Eine nähere

Untersuchung zeigte, dass Änderungen von λ_j um weniger als 10% bereits grössere Abweichungen bewirken, als sie in Fig. 15 auftreten.

Abschliessend sei noch auf eine Erscheinung hingewiesen, die während der Aufnahme der Impulsform beobachtet wurde. Der

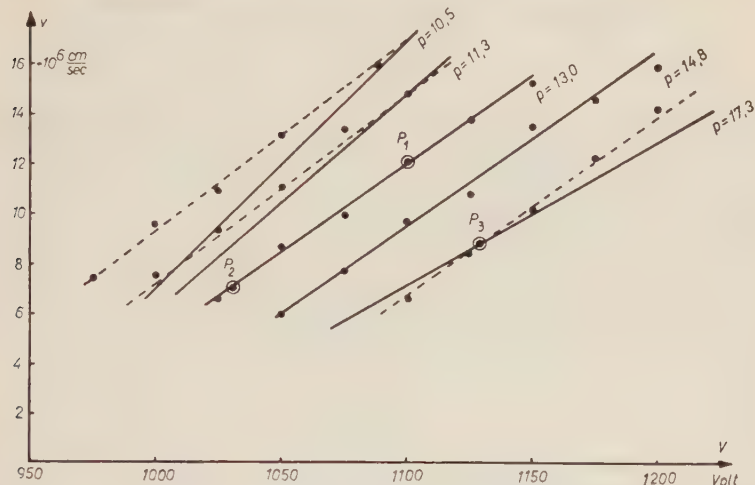


Fig. 15.

Experimenteller und theoretischer Verlauf der Ausbreitungsgeschwindigkeit.

— berechnete Werte. • gemessene Werte.

p : Alkoholdruck in mm Hg.

gleichmässige Anstieg des Impulses, wie er bei der photographischen Aufnahme auftritt, entsteht durch Überlagerung vieler Einzelimpulse, deren Anstieg eine gewisse Welligkeit aufweist, die, wie eine nähere Prüfung zeigte, nicht vom Verstärker herrührt. Die Vermutung liegt nahe, dass Schwankungen der Ladungsdichte im Ionenschlauch die Ursache sind.

Der Basler chemischen Industrie, der Kommission des Bundes zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung und der Firma Brown, Boveri & Cie. danken wir für finanzielle Unterstützung. Ferner danken wir Herrn L. H. Schepp, Tubag AG., für grosszügiges Entgegenkommen.

β -Zerfall von N^{16}

von E. Bleuler, P. Scherrer, M. Walter und W. Zünti.

(19. IX. 1946.)

Zusammenfassung. Der β -Zerfall von N^{16} wurde in der Wilsonkammer und mit Hilfe von Absorptionsmessungen untersucht. Die Halbwertszeit ergab sich zu $7,35 \pm 0,05$ s. Das β -Spektrum ist komplex: eine Komponente von 10,3 MeV Maximalenergie gehört zum Übergang in den Grundzustand des Endkerns O^{16} ; mindestens zwei weitere Teilspektren führen auf angeregte Niveaus bei 6,2 und 6,7 MeV. Die Existenz eines weiteren Überganges auf ein Niveau von ca. 5 MeV ist nicht ausgeschlossen, doch müsste seine Häufigkeit kleiner als 25% sein. Für den Grundzustand von N^{16} ist ungerade Parität und, wenn den Niveaus von O^{16} die von DENNISON¹⁾ auf Grund des α -Teilchen-Modells berechneten Spinquantenzahlen zugeordnet werden, der Drehimpuls 1 oder $2\hbar$ anzunehmen.

1. Einleitung.

Bei der Bestrahlung von Sauerstoff mit schnellen Neutronen entsteht durch (n,p)-Prozess das Stickstoffisotop N^{16} , welches durch β -Zerfall in O^{16} übergeht. Die Untersuchung dieses Zerfalls kann über die angeregten Niveaus von O^{16} Aufschluss geben. Die einzige genauer untersuchte Kernreaktion mit dem gleichen Endkern ist $F^{19}(p,\alpha)O^{16}$ (Zusammenfassung s. STREIB, FOWLER und LAURITSEN²⁾). Dabei treten zwei Niveaus bei $6,2 \pm 0,1$ und $6,0 \pm 0,2$ MeV³⁾ auf, wobei das letztere seine Energie nicht als γ -Quant, sondern in Form eines Elektronenpaares abgibt. Es wird angenommen, dass es, wie der Grundzustand, vom Typ 0^+ (Spin 0, gerade Parität) ist, so dass der γ -Übergang streng verboten ist. Die Lage weiterer Niveaus wird von DENNISON¹⁾ auf Grund des α -Teilchen-Modells vorausgesagt (Tabelle 1), wobei er die beiden

Tabelle 1.

Termschema von O^{16} , nach DENNISON.

Drehimpulsquantenzahl und Parität	0^+	3^-	0^+	2^+	2^-	1^-
Anregungsenergie in MeV	0	5,1	5,9	6,29	6,30	6,6 usw.

experimentell festgestellten Niveaus zur Bestimmung der Konstanten seines Potentialansatzes benützt (2^- und 0^+ , mit den früheren Werten 6,3 und 5,9 statt 6,2 und 6,0 MeV). Das tiefste

Niveau von 5,1 MeV ist natürlich vom Paarniveau 0^+ aus durch γ -Übergang erreichbar, doch soll der Energieunterschied bei grosser Spindifferenz — genügend klein sein, so dass die Paaremission wahrscheinlicher bleibt.

Die früheren Untersuchungen des β -Zerfalls von N^{16} lassen keinen Zusammenhang mit diesem Termschema erkennen. Auch die Zerfallsenergie ist unbestimmt. FOWLER, DELSASSO und LAURITSEN⁴⁾, sowie NAIDU und SIDAY⁵⁾ fanden mit Wilsonkammermessungen eine β -Maximalenergie von 6 bis 6,5 MeV, jedoch mit relativ schlechter Statistik. Untersuchungen am Prozess $N^{15}(d,p)N^{16}$ durch HOLLOWAY⁶⁾ führten zur Bestimmung einer oberen Schranke von 11,7 MeV für die Zerfallsenergie von N^{16} . Aus der von SCHERRER, HUBER und ROSSEL⁷⁾ gemessenen Energietönung der Reaktion $F^{19}(n,\alpha)N^{16}$ berechnet sich die Zerfallsenergie zu 8,27 MeV.

In einem vorläufigen Bericht⁸⁾ wurde bereits mitgeteilt, dass das β -Spektrum von N^{16} komplex ist und von einer harten γ -Strahlung begleitet wird. Da die Quantenenergie dieser Strahlung damals ungenügend bekannt war, konnte auch die Zerfallsenergie noch nicht genau angegeben werden. In der Zwischenzeit ist eine Arbeit von SOMMERS und SHERR⁹⁾ erschienen, welche ähnliche Untersuchungen zum Inhalt hat. Diese Messungen bestätigen, dass die ersten Angaben der Zerfallsenergie^{4) 5) 7)} wesentlich zu klein sind.

2. Herstellung und Halbwertszeit von N^{16} .

Die zur Bestrahlung des Sauerstoffs (in H_2O , H_2BO_3) benötigten schnellen Neutronen wurden mit dem Tensator des Institutes erzeugt^{10) 11)}. Störende Fremdaktivitäten traten bei den vorliegenden Verhältnissen praktisch nicht auf.

An bestrahlten H_2BO_3 -Zylindern wurde der Intensitätsabfall über acht Halbwertszeiten verfolgt. Aus diesen Messungen ergab sich die Halbwertszeit zu 7,35 s mit einem mittleren statistischen Fehler von 0,05 s. Der von NAHMIA und WALLEN¹²⁾ angegebene Wert von 8,4 s wurde aus einer komplexen Zerfallskurve bestimmt und dürfte daher weniger genau sein.

3. Absorptionsmessungen.

Für die weiteren Untersuchungen wurde Leitungswasser bestrahlt, welches von der Neutronenquelle durch eine Kapillare in die zylindrische Messkammer floss, so dass eine stationäre Strahlungsintensität erzielt wurde (vgl. ¹¹⁾). In der Absorptionskurve

(Fig. 1) ist eine starke γ -Strahlung zu erkennen, deren Anteil sich — unter Berücksichtigung der Absorption der Elektronen in der 2,4 mm dicken aktiven Schicht selbst — zu 4% berechnet. Subtrahiert man diesen Untergrund, so erhält man die mit den mittleren statistischen Schwankungen eingetragenen Messpunkte. Die Kurvenform weist auf ein komplexes β -Spektrum hin. Die härteste Komponente (ca. 18%), die vermutlich in den Grundzustand führt, hat eine Maximalenergie von rund 10,5 MeV. Dieser Wert ist jedoch aus zwei Gründen unsicher:

1) Für Absorber über 7 mm wurde teilweise Messing verwendet, dessen Aluminiumäquivalent nur ungenau bekannt ist. Nach

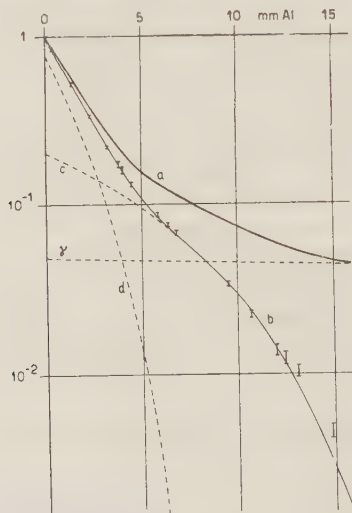


Fig. 1.

Absorption der Einzelstöße.

— a: $\beta + \gamma$ — b: β

- - - Zerlegung: c: 10,5 MeV (18%) d: weiches Teilspektrum.

FOURNIER¹³⁾ gilt bei Energien von 1—2 MeV für Messingabsorber der Flächendichte σ (g/cm^2):

$$d_{\text{Aluminium}} (\text{mm}) = \frac{\sigma}{0,27} \cdot \frac{105+Z}{105+13} = 4,22 \cdot \sigma_{\text{Messing}}.$$

Für die Sekundärelektronen der 17 MeV- γ -Strahlung des Prozesses $\text{Li}^7(p, \gamma) \text{Be}^8$ fanden wir hingegen folgende Beziehung:

$$d_{\text{Aluminium}} = 5,2 \cdot \sigma_{\text{Messing}}.$$

Für die Abszissen in Fig. 1 wurde, entsprechend der β -Energie, der Mittelwert aus diesen beiden Angaben benützt.

2) Die Extrapolation unserer bis 5 MeV reichenden Eichkurven¹⁴⁾ auf 10 MeV ist mit einiger Willkür behaftet.

Das weiche Teilspektrum scheint eine Energie von etwas über 4 MeV zu haben. Da es mit der γ -Strahlung gekoppelt ist, kann es mit Hilfe der β - γ -Koinzidenzen genauer untersucht werden.

4. β - γ -Koinzidenzen.

Die Absorption der Koinzidenzen ist in Fig. 2 dargestellt. Der vorhandene Untergrund (ca. 1%) ist nicht notwendigerweise wahren γ - γ -Koinzidenzen zuzuschreiben; Koinzidenzen zwischen ausgelösten Comptonelektronen und der dabei entstehenden Streustrahlung ergeben bereits einen Effekt von dieser Grössenordnung,

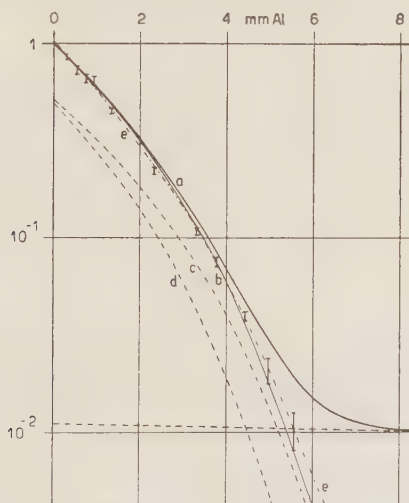


Fig. 2.

Absorption der Koinzidenzen.

- a: Koinzidenzen + Untergrund
- b: dasselbe, vom Untergrund befreit
- - - c und d: Zerlegung (4,3 und 3,8 MeV)
- e: abgeänderte Kurve b für den Fall einer weiteren γ -Linie bei 5,1 MeV

da bei den vorhandenen hohen γ -Energien die Ansprechwahrscheinlichkeit auch für die Streustrahlung relativ hoch ist. Die von diesem Untergrund befreite Absorptionskurve stimmt gut überein mit der weichen Komponente der in Fig. 1 angedeuteten Zerlegung. Der Vergleich mit den normalen Absorptionskurven⁽¹⁴⁾, neu bestimmt für zylindrische Anordnung) zeigt, dass dieses Teilspektrum wahrscheinlich komplex ist. Genaueren Aufschluss darüber kann allerdings nur die Messung der γ -Energien geben.

5. Bestimmung der γ -Energien.

a) Absorption der Sekundärelektronen der γ -Strahlung.

Die γ -Strahlungen von N^{16} und F^{19} (p, α), welche beide zu Niveauübergängen von O^{16} gehören, wurden mit der gleichen experimentellen Anordnung untersucht. Es ergab sich (vgl. Fig. 3), dass die Quantenenergie im Fall des N^{16} im Mittel höher ist als bei F^{19} . Ferner konnte abgeschätzt werden, dass eine eventuelle

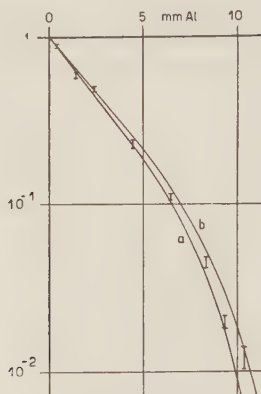


Fig. 3.

γ -Strahlung von N^{16} (Absorption der Sekundärelektronen).

- a: γ -Strahlung von F^{19} (p, α) (6,2 MeV)
- b: Vergleichskurve 6,7 MeV, berechnet aus a
- I: Messpunkte für N^{16} .

γ -Linie bei 5,1 MeV (vom Niveau 3- stammend; vgl. Tabelle 1) eine geringere Intensität als 30% der Gesamt- γ -Strahlung haben müsste.

b) Messung der γ -Energien in der Wilsonkammer.

Als Strahlungsquelle diente eine unmittelbar neben der Wilsonkammer angebrachte Messingkammer, durch welche das bestrahlte Wasser floss. Die Zerfallselektronen wurden durch eine hinreichend dicke Bleischicht weggefiltert. Zwecks Auslösung von Elektronenpaaren wurde eine Bleifolie von 0,15 mm Dicke in die Wilsonkammer eingebaut. Ein Magnetfeld von 1000 Oersted ermöglichte die Energiebestimmung aus der Bahnkrümmung. Bei der Ermittlung der zugehörigen γ -Energie bedingen die Energieverluste der β -Teilchen in der Bleifolie sowie die Krümmungsänderung infolge Vielfachstreuung im Kammergas die wesentlichsten Unsicherheiten. Trotz besonderer Massnahmen zur Intensitätssteigerung konnten

auf ca. 2000 Wilsonaufnahmen nur zehn Paare registriert werden. Durch Anbringen der nötigen Korrekturen ergaben sich folgende wahrscheinlichste Werte für die zugehörigen γ -Energien: 5,8 / 5,9 / 6,0 / 6,1 / 6,3 / 6,6 / 6,6 / 6,8 / 6,8₅ MeV. Da aus den Messungen an der F- γ -Strahlung²⁾ ein Niveau von O¹⁶ bei $6,2 \pm 0,1$ MeV bekannt ist, erscheint es plausibel, die ersten fünf der obigen Werte diesem Niveau zuzuordnen. Die übrigen fünf Paare weisen im Mittel auf eine γ -Energie von $6,7 \pm 0,3$ MeV hin, welche bei F¹⁹(p, α) nicht auftritt, aber einem nach der Rechnung von DENNISON¹⁾ möglichen angeregten Zustand gut entsprechen würde (vgl. Tabelle 1). Dieses Resultat deckt sich mit der Tatsache, dass bei der Untersuchung der Sekundärelektronenabsorption (Fig. 3) bei N¹⁶ eine etwas höhere mittlere γ -Energie gefunden wurde als bei F¹⁹.

Das Ergebnis der Wilsonkammermessungen legt es nahe, die Absorptionskurve der Koinzidenzen (Fig. 2) in zwei Komponenten zu zerlegen, deren Grenzennergien sich um 0,5 MeV unterscheiden. Die beste Anpassung an die Messpunkte erhält man dabei mit den Grenzennergien 4,3 und 3,8 MeV bei gleicher Intensität (Kurven *c* und *d* in Fig. 2). Die Übereinstimmung ist weniger gut, wenn man ein Intensitätsverhältnis annimmt, das gleichen Matrixelementen entsprechen würde. Zu bemerken ist, dass sie durch Hinzufügen eines dritten Teilspektrums mit 5,0 MeV Maximalenergie noch wesentlich verbessert wird. Die günstigste Annahme lautet in diesem Fall: 5,0 MeV (20%), 3,9 MeV (50%), 3,4 MeV (30%) (Kurve *e* in Fig. 2). Dem hinzugefügten β -Übergang würde die γ -Linie von 5,1 MeV entsprechen, welche nach dem Termschema von Tabelle 1 möglich ist. Die Existenz dieses β -Überganges ist jedoch fraglich, da keine durch die entsprechende γ -Strahlung ausgelöste Paarерzeugung beobachtet wurde. Die Wahrscheinlichkeit dafür, dass die 5,1 MeV- γ -Linie in der oben angenommenen Intensität vorhanden ist und trotzdem keine Paare beobachtet wurden, beträgt rund $1/10$.

6. Untersuchung des β -Spektrums mit der Wilsonkammer.

Um die gefundenen Resultate zu erhärten, wurde die Energieverteilung der Zerfallselektronen in der Wilsonkammer untersucht. Es ergab sich dabei gleichzeitig die Gelegenheit, das Vorkommen von Positronen nachzuweisen, welches den β -Übergang auf das in der Einleitung erwähnte Niveau bei 6,0 MeV bestätigen würde. Die direkte Beobachtung von Paaren ist bei den vorliegenden geometrischen Verhältnissen nicht wahrscheinlich.

Das am Tensator bestrahlte Wasser wurde durch einen im Expansionsraum der Wilsonkammer befindlichen, als Dreiteilskreis ausgebildeten Kanal geleitet. Durch dessen dünne Seitenwand (0,1 mm Kupfer) konnten die Zerfallselektronen ohne wesentliche Energieverluste in die Wilsonkammer gelangen. Um sowohl bei grossen als auch bei kleinen Energien brauchbare Resultate zu erhalten, wurden die Messungen teils bei einem Magnetfeld von 1000 Oersted, teils bei einem solchen von 500 Oersted durchgeführt. Die geometrischen Verhältnisse der Anordnung bedingten eine das Spektrum fälschende Selektivität. Die damit verbundene Kor-

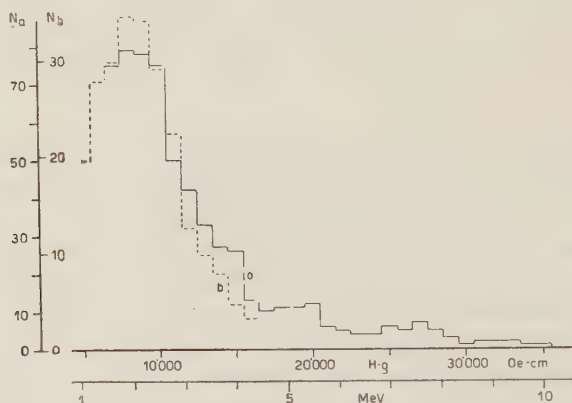


Fig. 4.

β -Spektrum von N^{16} (Wilsonkammer).

— a: Messungen mit 1000 Oersted
 - - - b: „ „ 500 „

N_a, N_b : korrigierte Teilchenzahlen pro Hq -Intervall (1000 Oersted·cm). Das Grössenverhältnis der beiden Masstäbe wurde durch Auszählen der Spuren mit $Hq > 15000$ Oersted·cm bestimmt.

rektur ist im Gebiet hoher Energien verschwindend klein und erreicht den Betrag 100% bei 1,6 MeV (1000 Oersted) bzw. 0,6 MeV (500 Oersted). Ferner mussten die Energieverluste in Wasserschicht und Kupferfolie berücksichtigt werden. Fig. 4 zeigt das entsprechend korrigierte Spektrum. Es bestätigt die Existenz einer energiereichen Komponente, für welche die Auswertung nach der FERMISCHEN Theorie (unter Berücksichtigung der durch die Vielfachstreuung bedingten Verformung der Verteilungsfunktion) eine Grenzenergie von 10 ± 1 MeV und eine Intensität von $22 \pm 5\%$ ergibt. Für den Rest des Spektrums liefert die Extrapolation eine Maximalenergie von ca. 4,6 MeV. Die Resultate der Zählrohr-

messungen finden sich somit im Rahmen der Messgenauigkeit bestätigt. Die Anzahl der als Positronenspuren interpretierten Wilsonbahnen deutet darauf hin, dass der β -Übergang auf das Niveau 0^+ (6,0 MeV, vgl. Tabelle 1) einmal verboten ist.

7. Zerfallsenergie und Zerfallsschema.

Infolge des hohen Betrages der Zerfallsenergie ist ihre *direkte* Bestimmung (Wilsonkammer: 10 ± 1 MeV; Absorption der Einzelstösse: ca. 10,5 MeV) nicht sehr genau. Bessere Resultate sind zu erwarten, wenn man zu den Grenzenenergien der β -Übergänge auf angeregte Zustände die entsprechenden γ -Energien addiert. Aus den in Abschnitt 5 gemachten Angaben ergibt sich mit dieser Methode eine Zerfallsenergie von 10,1 bzw. 10,5 MeV (Fehlergrenzen: $\pm 0,5$ MeV), je nachdem ob man das Vorhandensein der γ -Linie bei 5,1 MeV annimmt oder nicht. Die Zerfallsenergie liegt somit in den Grenzen $10,3 \pm 0,7$ MeV. Daraus berechnet sich für N^{16} eine Masse von $16,0111 \pm 0,0008$.

Aus den gefundenen Resultaten und den Literaturangaben lässt sich das Zerfallsschema von N^{16} mit einiger Sicherheit konstruieren. Seine wichtigsten Daten sind in Tabelle 2 zusammengestellt.

Tabelle 2.

Zerfallsschema von N^{16} . (In Klammern sind die Werte beigefügt, die sich ergeben, wenn man eine zusätzliche γ -Energie von 5,1 MeV annimmt; vgl. oben.)

β -Zerfall von N^{16}				Niveaus von O^{16}	
maximale β -Energie (MeV)	Intensität (%)	log ft*)	Charakter des β -Übergangs**)	Anregs.-energie (MeV)	Typ nach DENNISON
10,5 (10,1)	20 (20)	6,81 (6,72)	$1 \times$ verboten	0	0^+
— (5,0)	— (15)	— (5,43)	?	5,1	3^-
4,5 (4,1)	ca. 2	6,1 (5,9)	$1 \times$ verboten	6,0	0^+
4,3 (3,9)	40 (25)	4,70 (4,50)	erlaubt	6,2	2^-
3,8 (3,4)	40 (40)	4,45 (4,22)	erlaubt	6,7	1^-

Nach den Auswahlregeln für β -Übergang¹⁷⁾ ergibt sich für den Grundzustand von N^{16} ungerade Parität und — mit den Quantenzahlen von DENNISON — die Drehimpulsquantenzahl 1 oder 2. Dabei ist vorausgesetzt, dass die energiereiche Komponente des β -Spektrums in den Grundzustand von O^{16} führt. Die Koinzidenz-

*) Über die Bedeutung der ft-Werte vgl. KONOPINSKI¹⁵⁾.

**) Auf Grund der Diskussion von ИТО¹⁶⁾, die wir derjenigen von ¹⁵⁾ vorziehen.

messungen zeigen, dass sie nur mit einer γ -Energie von maximal 0,8 MeV gekoppelt sein könnte. Ein derart tiefliegendes Niveau ist aber mit den Modellvorstellungen schlecht verträglich. Ausserdem müsste es vom Typ 0^+ oder 0^- sein, damit der γ -Übergang vom paarerzeugenden Niveau aus verboten bleibt. Die Annahme 0^+ würde an der obigen Zuordnung der Quantenzahlen nichts ändern. Ein Niveau 0^- hingegen ist unwahrscheinlich, da in diesem Fall beim Prozess $F^{19}(p, \alpha)O^{16}$ langreichweitige α -Teilchen in Konkurrenz mit der γ -Strahlung auftreten müssten. Da diese nicht beobachtet werden²⁾, ist mit grosser Wahrscheinlichkeit anzunehmen, dass man an der ursprünglichen Interpretation (Tabelle 2) festzuhalten hat.

Zürich, Physikalisches Institut der ETH.

Literaturverzeichnis.

- 1) DENNISON, Phys. Rev. **57**, 454 (1940).
- 2) STREIB, FOWLER und LAURITSEN, Phys. Rev. **59**, 253 (1941).
- 3) TOMLINSON, Phys. Rev. **60**, 159 (1941).
- 4) FOWLER, DELSASSO und LAURITSEN, Phys. Rev. **49**, 561 (1936).
- 5) NAIDU und SIDAY, Proc. Phys. Soc. London **48**, 332 (1936).
- 6) HOLLOWAY, Phys. Rev. **56**, 705 (1939); **57**, 347 (1940); **58**, 847 (1940).
- 7) SCHERRER, HUBER und ROSSEL, H.P.A. **14**, 618 (1941).
- 8) BLEULER, SCHERRER und ZÜNTI, H.P.A. **18**, 262 (1945).
- 9) SOMMERS und SHERR, Phys. Rev. **69**, 21 (1946).
- 10) IMHOF, Micafil-Nachrichten Juli 1939.
- 11) BLEULER und ZÜNTI, H.P.A. **19**, 137 (1946).
- 12) NAHMIAS und WALLEN, C.R. **203**, 71 (1936).
- 13) FOURNIER, Ann. phys. **8**, 206 (1927).
- 14) BLEULER und ZÜNTI, H.P.A. **19**, 375 (1946).
- 15) KONOPINSKI, Rev. of Mod. Phys. **15**, 209 (1943).
- 16) ITOH, Proc. Phys.-Math. Soc. Japan **22**, 531 (1940).
- 17) KONOPINSKI und UHLENBECK, Phys. Rev. **60**, 308 (1941).

Etude des forces intermoléculaires par diffusion des neutrons lents.

Application à N_2 , H_2O et KH_2PO_4

par J. Rossel.

(17. I. 1947.)

Sommaire. La possibilité d'une méthode d'investigation des forces intermoléculaires fondée sur la mesure de la section totale de diffusion des neutrons lents par la substance en question est étudiée d'un point de vue théorique général et expérimentée:

1° Dans le cas de N_2 sous ses différents états d'agréation. L'influence sur la diffusion des transitions gaz-liquide et liquide-solide (1er ordre) et d'une transition du 2e ordre sur la phase solide à 35,4° K est mise en évidence et une interprétation est tentée.

2° Dans le cas spécial des liaisons-hydrogène:

- a) Pour H_2O sous forme liquide et solide où l'effet constaté de la température est discuté dans le cadre théorique disponible.
- b) Pour le cristal seignette-électrique KH_2PO_4 .

Dans ce dernier cas une discussion quantitative des mesures effectuées, suivant deux axes différents du cristal, au-dessus et au-dessous du point de Curie permet d'indiquer des valeurs pour la fréquence fondamentale d'oscillation du proton dans la liaison $O-H-O$ et pour l'anisotropie de cette dernière de part et d'autre du point de transition.

I. Introduction.

L'influence des liaisons chimiques sur la diffusion des neutrons de faible énergie (env. 1 eV et au-dessous) a été étudiée tout d'abord à propos du ralentissement des neutrons par les substances hydrogénées, la paraffine en particulier. L'importance considérable de cet effet des liaisons moléculaires démontré expérimentalement et théoriquement à cette occasion indique assez qu'il faut en tenir compte dans les mesures de diffusion nucléaire des neutrons lents et particulièrement dans le cas des substances à faible poids atomique. C'est ainsi que le phénomène a été traité théoriquement de façon détaillée pour la molécule d'hydrogène gazeux et a conduit aux mesures de σ dans le para et l'orthohydrogène tendant à déterminer l'influence des spins nucléaires dans l'interaction proton-neutron.

Dans cette catégorie de problèmes l'influence de structure chimique est considérée comme une perturbation. Dans un grand

nombre de cas cependant la liaison n'est pas connue et présente ainsi un intérêt certain pour elle-même. La diffusion des neutrons lents peut constituer alors une méthode d'investigation des structures et des champs moléculaires également, du moins pour les substances où l'on peut s'attendre à priori à une influence des liaisons sur le choc des neutrons. Ce sera naturellement le cas en premier lieu pour les éléments de faible masse où la transmission de moment cinétique par le neutron peut être importante.

Du fait que l'influence des liaisons se fait sentir sur le neutron indépendamment de toute charge et de tout phénomène de polarisation, cette méthode d'étude des structures se situe sur un plan particulier à côté des méthodes usuelles par diffusion de la lumière (effet RAMAN) diffraction des rayons X et des électrons. Elle peut par conséquent constituer un moyen complémentaire utile d'investigation.

Dans le cas de l'atome d'hydrogène, la section totale de diffusion pour les rayons X (cohérente et incohérente) a pour valeur :

$$\sigma_H = 6,7 \cdot 10^{-25} \text{ cm}^2$$

(Quand l'atome H est lié chimiquement le pouvoir diffusant disparaît complètement.)

Si on lui compare la section de diffusion pour les neutrons lents :

$$\sigma_H = 20 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$$

on voit immédiatement l'avantage que comporte l'emploi de neutrons. La faible masse du noyau H a de plus pour conséquence une forte sensibilité des neutrons à la liaison protonique. C'est donc justement dans le cas où les méthodes usuelles se révèlent impuissantes que les neutrons sont le plus susceptibles de fournir des renseignements intéressants.

Lorsque l'énergie des neutrons est de l'ordre de $\frac{1}{100}$ eV ou inférieure de sorte que la longueur d'onde associée égale ou dépasse la distance des centres atomiques diffusants, les phénomènes de diffraction commencent de jouer un rôle important surtout pour les diffuseurs cristallins. Cet effet de diffusion cohérente a été mis en évidence par BEYER et WHITTAKER¹⁾ puis par RASETTI²⁾. Pour un spectre de neutrons il en résulte une diminution de la section de diffusion totale du fait que la réflexion est sélective et n'a lieu que pour les angles d'incidence satisfaisant à la condition de BRAGG. La diffusion totale est ainsi minimale pour un diffuseur monocristal et augmente pour une substance polycristalline en proportion de la finesse du grain.

Cette observation constitue la base d'une méthode nouvelle d'étude de la structure polycristalline des métaux et alliages et des transitions ordre-désordre dans ces substances, expérimentée tout d'abord par NIX, BEYER et DUNNING³⁾ puis par NIX et CLÉMENT⁴⁾.

L'étude des liaisons intermoléculaires proprement dites que nous envisageons, se fonde avant tout sur la diffusion incohérente et les effets d'interférence éventuels ne constituent dans ce cas qu'un effet d'intérêt secondaire sinon perturbateur.

Une série de mesures de CARROL⁵⁾ sur la diffusion par le proton lié dans les hydrocarbures révèle une déviation de l'effet de masse simple qui semble bien indiquer une influence marquée des liaisons proprement dites.

II. Conditions expérimentales et choix des substances.

Nous avons à notre disposition une source de $Ra + Be$ et $Rn + Be$. Il n'est donc possible d'envisager des mesures qu'avec des neutrons thermiques (neutrons C) dont le spectre de vitesses s'étend jusqu'à la limite d'absorption du cadmium soit 0,2 eV environ. Dans ces conditions il serait nécessaire pour une discussion des résultats de prendre la moyenne sur le spectre de neutrons des expressions théoriques pour les sections efficaces. Les calculs sont en général impraticables si bien que nous nous contenterons d'employer une valeur moyenne pour l'énergie des neutrons.

L'enregistrement se fait par chambre de bore donc, pour une efficacité du détecteur pas trop grande, proportionnellement à $1/v$. Si l'on admet une distribution de MAXWELL des neutrons dans la paraffine, le calcul de la moyenne doit se faire avec un poids égal à $v^2 \exp.(-mv^2/2kT) \cdot dv$. On obtient ainsi la valeur $E = 3/2 kT$ soit 0,037 eV pour 290° K.

Remarquons que cette manière de faire n'est pas en soi plus arbitraire que le calcul exact de la moyenne sur σ puisqu'en pratique on est obligé d'employer des diffuseurs dont l'épaisseur d n'est pas faible et que c'est en réalité une valeur moyenne de la transmission e^{-nad} que l'on mesure.

Les substances choisies pour cette étude sont N_2 , H_2O et KH_2PO_4 . L'azote dont la molécule est simple et relativement légère peut s'obtenir facilement sous forme gazeuse, liquide et solide et permet d'étudier l'effet d'agrégation et des transitions ordinaires (1er ordre) sur la diffusion. De plus, le solide (cristal moléculaire non polaire), présente à 35,4° K une transition (du 2e ordre) d'un type particulier et assez mal connu consistant probablement dans le passage d'un état de rotation libre des molécules dans le cristal à un état

de rotation limitée: libration autour d'une position d'énergie minimum (PAULING⁶), FOWLER⁷).

Les mesures effectuées dans un domaine de températures compris entre 290° K et 20° K ont déjà été publiées⁸); nous les reproduisons dans ce travail à titre de comparaison.

H₂O et KH₂PO₄ présentent un intérêt en raison de la liaison-hydrogène qui les caractérise.

H₂O constitue, dans l'état solide et probablement en partie dans l'état liquide également, le cas le plus simple de liaison-hydrogène.

Le cristal de phosphate monobasique de potassium (système tétragonal) est connu pour le phénomène d'électricité seignette, caractérisé par l'apparition au point de Curie de 123° K d'une polarisation spontanée dirigée suivant l'axe singulier *c* et qu'on attribue au type particulier de liaison-hydrogène connectant les groupes PO₄ tétraédriques les uns aux autres. (Voir § V.)

Une fréquence infra-rouge caractéristique des liaisons O—H—O, si elle existe, n'a pas encore pu être décelée, du moins dans le domaine étudié de 1 à 4 μ . (v. GUGELBERG, travail de diplôme, Zurich E. P. F., non publié).

Le cristal a déjà été soumis dans cet institut à de nombreuses investigations par les méthodes usuelles électriques, mécaniques et thermiques. C'est pourquoi on pouvait se demander si la diffusion des neutrons n'était pas susceptible de fournir des indications supplémentaires intéressantes sur la liaison des protons (grandeur et anisotropie) et sur une modification éventuelle au-dessous du point de Curie, en mesurant le pouvoir diffusant d'un monocristal suivant l'axe *a* (ou l'axe *b* équivalent) et l'axe singulier *c*, au-dessus et au-dessous de 123° K.

III. Considérations théoriques.

1° *Les différents cas déjà étudiés.* — Le problème de la diffusion moléculaire a été traité dans les cas suivants:

a) Ralentissement des neutrons dans la paraffine.

L'effet dû aux liaisons du proton dans la paraffine a été traité d'abord par FERMI⁹) pour un modèle approximatif où le proton est remplacé par un oscillateur harmonique isotrope lié à une masse infinie. Le calcul a été repris par BETHE¹⁰) et étendu à un oscillateur anisotrope et enfin ARLEY¹¹) a fait une étude détaillée du problème à partir d'un modèle plus complet d'oscillateur: l'anisotropie est comme auparavant de révolution avec deux fréquences de vibration différentes dans la direction de la liaison de valence et dans les directions perpendiculaires, mais l'oscillateur est

lié à une masse égale à celle du groupe atomique dont fait partie le proton. De cette façon on tient compte de la transmission d'énergie aux mouvements thermiques des groupes atomiques caractéristiques du solide en question (cristal complexe), c'est-à-dire de l'excitation possible d'un quantum élastique. Cette manière de faire est légitime si l'on peut considérer ces groupes comme libres, ce qui est le cas lorsque l'énergie des neutrons incidents est suffisamment grande par rapport à celle des quanta acoustiques du solide. Cette dernière est déterminée par la ou les températures de DEBYE de la substance. Si ces températures sont inférieures à la normale, l'approximation indiquée est applicable pour les neutrons thermiques de 290° K. Pour les cristaux moléculaires, les forces de cohésion de VAN DER WAALS sont faibles et la condition ci-dessus sera en général réalisée.

Remarquons que l'exigence d'indépendance des groupes atomiques vis-à-vis de la collision interdit en même temps les phénomènes d'interférences dans le réseau moléculaire puisqu'elle exprime que la longueur d'onde de DE BROGLIE du neutron est petite par rapport à la distance des centres diffusants.

b) Molécules hydrogénées gazeuses.

A côté du cas de la molécule d'hydrogène léger et lourd, traité en détail en connexion avec la diffusion dans l'ortho et le para-hydrogène ¹²⁾, ¹³⁾, seule la diffusion par les molécules polyatomiques hydrogénées gazeuses a été étudiée. Le calcul a été fait par SACHS et TELLER¹⁴⁾ par une méthode particulière fondée sur les hypothèses suivantes: Les neutrons sont d'énergie faible par rapport aux vibrations de la molécule de sorte qu'elle peut être considérée comme rigide et grande par rapport aux niveaux de rotation ainsi qu'à leur espacement à la température considérée, ce qui légitime un traitement classique des rotations ($E_n \gg E_{\text{rot}}$; $E_n \gg (kT \cdot E_{\text{rot}})^{1/2}$). Chaque noyau de la molécule peut alors être traité séparément de la façon suivante: on décompose les mouvements de la molécule (rigide) en deux systèmes orthogonaux, l'un caractérisé par la condition que le noyau considéré reste fixe, l'autre par un moment angulaire nul par rapport au noyau. Le choc avec un neutron thermique portant un moment de rotation $l = 0$, laisse le moment par rapport au noyau inchangé. Le système de déplacements correspondant est susceptible par conséquent de décrire totalement l'altération du mouvement moléculaire introduite par le choc. A son tour ce type de déplacements peut être remplacé par le mouvement d'un point matériel fictif associé au noyau considéré et affecté d'une masse à caractère tensoriel.

Le calcul effectué suivant les lignes indiquées conduit les auteurs à l'expression suivante pour la section de diffusion du noyau dans la molécule (généralisation de la loi limite, déduite de la formule de BORN, suivant laquelle la section efficace est proportionnelle au carré de la masse réduite):

$$\sigma = \sigma_{\infty} (\mu_1 \mu_2 \mu_3)^{1/2} \left[\sum_i \mu_i \left(\alpha_i - \frac{\varrho}{P_n} n_i^{1/2} \beta_i \right)^2 \right]^{1/2}. \quad (1)$$

Dans cette expression σ_{∞} est la section de diffusion du noyau rigidement lié à une masse infinie; σ_0 étant la section de diffusion du noyau (de masse atomique A) libre et initialement au repos, on a $\sigma_{\infty} = \sigma_0 ((1 + A)/A)^2$; μ_1, μ_2, μ_3 sont les valeurs caractéristiques du tenseur défini par $\mu^{-1} = 1 + n = 1 + mM^{-1}$ où M est le tenseur-masse du point fictif et m la masse du neutron.

ϱ et les β_i représentent la grandeur et les cosinus directeurs, dans le système des axes principaux du tenseur de masse, du vecteur de composantes $n_i^{1/2} P_i$ (\tilde{P} = moment cinétique du point fictif dans le système de l'observateur) et P_n et les α_i les grandeurs correspondantes pour le moment cinétique \tilde{P}_n du neutron.

La section efficace expérimentale est une moyenne de (1) sur les directions d'incidence α_i et les directions de vol β_i de la molécule ainsi que sur les mouvements thermiques définis par ϱ avec la distribution de MAXWELL correspondant à la température du gaz. La diffusion moléculaire s'obtiendra enfin comme somme des contributions particulières de chaque noyau de la molécule.

Le calcul de ces différentes moyennes n'est pas directement praticable sur l'expression (1) et exige un développement en série limitant de façon considérable le domaine de validité de la théorie.

c) Cristaux.

Pour être complets, nous citerons la diffusion des neutrons lents dans les substances cristallines simples (métaux, cristaux mono-atomiques), problème traité théoriquement d'abord par WICK¹⁵⁾ par une méthode géométrique de propagation d'ondes. La théorie a été développée également, de façon détaillée, par WEINSTOCK¹⁶⁾ appliquant la méthode de BORN pour les collisions. La diffusion élastique et inélastique dans le réseau est calculée par décomposition des ondes acoustiques en vibrations normales de la façon habituelle adoptée pour les rayons X. L'effet de la température se manifestant par une excitation plus ou moins étendue des quanta acoustiques est introduit dans le calcul par un facteur de BOLTZMANN et un spectre de fréquences de DEBYE. L'influence des diffé-

rents isotopes et du spin qui tend naturellement à diminuer la diffusion cohérente est négligée.

Le même problème a été également discuté par SEEGER et TELLER¹⁷⁾ au moyen de la sphère d'EWALD et du réseau réciproque.

2° Cas général de diffusion moléculaire.

Le problème n'a pas été traité pour le cas général et il ne semble pas qu'un calcul rigoureux soit possible par les méthodes usuelles.

Les différentes théories partielles que nous venons de passer en revue suggèrent pour le problème de la diffusion dans le cas de molécules polyatomiques à l'état gazeux ou solide, une méthode approximative certes, mais susceptible de permettre quelques considérations quantitatives.

Les groupes atomiques sont capables de trois types de mouvements dans le cas général de cristaux complexes : vibrations internes correspondant au spectre infra-rouge (branche optique), rotations plus ou moins libres du groupe comme tel et mouvements d'agitation thermique c'est-à-dire ondes élastiques de faible énergie (branche acoustique).

Nous considérerons l'approximation où ces mouvements peuvent être considérés comme indépendants.

La contribution des rotations à la section de diffusion peut s'obtenir dans le cas des rotations libres par la méthode de SACHS et TELLER pour autant que les conditions exigées par cette théorie sont réalisées.

L'influence des liaisons internes peut être introduite en remplaçant le facteur σ_{∞} de l'expression (1) par la section efficace moléculaire de vibration correspondante.

Celle-ci se calculera en décomposant les vibrations de la molécule, supposées d'amplitudes assez petites pour être considérées comme harmoniques, en vibrations normales (voir aussi § IV. 3). Dans ce calcul, la molécule sera supposée de masse infinie.

L'influence des ondes thermiques dans le réseau moléculaire peut être considérable pour des neutrons d'énergie très faible et devrait en principe être traitée par la méthode appliquée aux cristaux simples. Pour les neutrons de plus grande énergie toutefois (290° K) qui nous intéressent, cette influence sera prise en considération de la façon proposée par ARLEY et indiquée plus haut et légitime dans ce cas. Elle est par conséquent automatiquement incluse dans le facteur de rotation qui donne l'effet de masse dans la collision.

3° Expression de la section efficace de diffusion pour une molécule vibrante.

L'application de la méthode d'approximation de BORN à la collision d'un neutron lent a été justifiée par FERMÍ¹⁾.

Par suite du faible rayon d'action des forces nucléaires par rapport, d'une part à la longueur d'onde de DE BROGLIE du neutron, d'autre part au domaine de variation de la fonction d'onde décrivant la vibration du noyau, l'interaction neutron-noyau peut être choisie à rayon d'action nul et exprimée par une fonction delta.

En introduisant comme grande nucléaire fondamentale la section efficace de diffusion du neutron par le noyau libre initialement au repos σ_0 , le potentiel d'interaction s'écrit :

$$U = -\sqrt{4\pi\sigma_0} \frac{\hbar^2}{2\mu} \delta(\vec{r} - \vec{R})$$

où $\mu = \frac{mM}{m+M}$ est la masse réduite du neutron et du noyau de masse M

\vec{r} = coordonnée du neutron

\vec{R} = coordonnée du noyau.

L'interaction entre le neutron et la molécule sera la somme d'expressions analogues pour chaque noyau :

$$V = \sum_j U_j.$$

La formule de BORN donne alors pour la section efficace différentielle :

$$\sigma_{r,r'} d\Omega = \frac{k'}{k} \left| \frac{m}{2\pi\hbar^2} \int \Phi_{v'}^* e^{i(\vec{k}-\vec{k}')\vec{r}} \cdot V \cdot \Phi_v d\tau \cdot d\vec{r} \right|^2 d\Omega.$$

Pour une molécule de masse finie, m doit être remplacé par la masse réduite du système neutron-molécule.

En intégrant sur \vec{r} , l'expression ci-dessus devient avec $\lambda_j = \sqrt{\sigma_{0j}}$

$$\sigma_{v,v'} d\Omega = \frac{k'}{k} \frac{m^2}{4\pi} \left| \sum_j \frac{\lambda_j}{\mu_j} \int e^{i(\vec{k}-\vec{k}')\vec{R}_j} \Phi_v \Phi_{v'}^* d\tau \right|^2 d\Omega.$$

Le mouvement de vibration de la molécule peut s'exprimer dans les coordonnées normales $x_1, x_2, \dots, x_1 \dots x_q$. (q = nombre de degrés de liberté internes de la molécule). On a alors simplement un système d'oscillateurs linéaires harmoniques de fréquences $\omega_1 \dots \omega_q$ (avec dégénérescence possible : $\omega_i = \dots \omega_r$) et de masse unité, tels que :

$$E_{\text{kin}} = \frac{1}{2} \sum_i \dot{x}_i^2 \quad \text{et} \quad E_{\text{pot}} = \frac{1}{2} \sum_i \omega_i^2 x_i^2.$$

La fonction d'onde décrivant l'état de vibration de la molécule est un produit de q fonctions d'onde d'oscillateur harmonique:

$$\Phi_v = \prod_l \left[(\omega_l / \hbar \pi)^{1/4} / (2^{v_l} v_l!)^{1/2} \right] \cdot e^{-\frac{\omega_l x_l^2}{2\hbar}} H_{v_l}(x_l \sqrt{\omega_l / \hbar}).$$

La normalisation est telle que $\int \Phi_v \Phi_v^* d\tau = 1$.

Les coordonnées \tilde{R}_j des noyaux dans la molécule sont des fonctions linéaires des x :

$$\tilde{R}_j = \tilde{b}_j + \delta \tilde{R}_j = \tilde{b}_j + \sum_i \tilde{a}_{ji} x_i.$$

L'élément de matrice s'écrira par conséquent:

$$M_{v,v'} = \sum_j \frac{\lambda_j}{\mu_j} e^{i(\tilde{k}-\tilde{k}')\tilde{b}_j} \cdot \prod_l \left[(\omega_l / \hbar \pi)^{1/2} (2^{v_l+v'_l} v_l! v'_l!)^{-1/2} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i(\tilde{k}-\tilde{k}')\tilde{a}_{jl}x_l - \frac{\omega_l x_l^2}{\hbar}} \cdot H_{v_l} H_{v'_l} dx_l \right].$$

Tout revient au calcul de l'intégrale dans la parenthèse. L'état initial des molécules aux températures qui nous intéressent est l'état de vibration fondamental soit $v_l = 0$ pour tous les l .

En posant

$$x_l \sqrt{\omega_l / \hbar} = \xi$$

et en faisant usage de l'expression définissant les polynômes d'HERMITE:

$$H_v(\xi) = e^{\xi^2} \left(\frac{d^v}{d\xi^v} e^{-(\xi-x)^2} \right)_{x=0}$$

l'intégrale se laisse facilement déterminer: (nous remplaçons v' par v)

$$J_{0,v_l} = \frac{(i B_{jl})^{v_l} e^{-B_{jl}^2/4}}{\sqrt{2^{v_l} v_l!}} \quad \text{avec} \quad B_{jl} = (\tilde{k} - \tilde{k}') \tilde{a}_{jl} \sqrt{\hbar / \omega_l}.$$

On obtient ainsi pour l'élément de matrice:

$$M_{0,v} = \sum_j \frac{\lambda_j}{\mu_j} e^{i(\tilde{k}-\tilde{k}')\tilde{b}_j} \prod_l (-1)^{v_l/2} (v_l!)^{-1/2} (\hbar/2\omega_l)^{v_l/2} \times [(\tilde{k} - \tilde{k}') \tilde{a}_{jl}]^{v_l} e^{-[(\tilde{k}-\tilde{k}') \tilde{a}_{jl}]^2 \hbar/4\omega_l} \quad (2)$$

et pour section efficace différentielle:

$$\sigma d\Omega = \frac{m^2}{4\pi} \frac{k'}{k} |M_{0,v}|^2 d\Omega. \quad (3)$$

Collisions élastiques.

L'énergie E_n des neutrons employés étant relativement faible, on aura en général $E_n < \hbar \omega_i$, c'est-à-dire des collisions élastiques: $v_1 = v_2 = \dots = v_q = 0$.

Comme la masse de la molécule est supposée infinie:

$$k = k' \text{ et } |\vec{k} - \vec{k}'|^2 = 2 k^2 (1 - \cos \vartheta) = \frac{4m}{\hbar^2} E_n (1 - \cos \vartheta)$$

ϑ désignant l'angle de déflexion du neutron.

En appelant α_{ji} les cosinus des angles formés par le vecteur $\vec{k} - \vec{k}'$ et les vecteurs \vec{a}_{ji} et en posant $\varepsilon_i = \frac{E_n}{\hbar \omega_i}$ l'élément de matrice s'écrit:

$$M_{0,0} = \sum_j \frac{\lambda_j}{\mu_j} e^{i(\vec{k}-\vec{k}') \cdot \vec{b}_j} e^{-m(1-\cos \vartheta) \sum_l \varepsilon_l a_{jl}^2 \alpha_{jl}^2} \quad (4)$$

Dans les considérations qui précèdent il n'est pas tenu compte de l'influence des différents isotopes et des spins des noyaux dont l'effet est de modifier l'interaction nucléaire avec le neutron et tend à diminuer la composante cohérente de la diffusion. Il ne semble pas que l'importance de cet effet puisse justifier la complication que présenterait son introduction dans les calculs d'autant plus que les éléments étudiés n'ont tous qu'un isotope prépondérant (N, H, O, K, P).

IV. Cas particuliers de N_2 , H_2O et KH_2PO_4 .

L'application des formules générales aux substances qui font l'objet de cette étude exige dans chaque cas une discussion particulière.

1° Azote.

La diffusion des neutrons lents par la molécule d'azote gazeux pourrait se calculer de façon exacte lorsque la molécule ne subit que des transitions simples à partir d'états déterminés (neutrons de très faible énergie et très basses températures); on sait que le calcul a été effectué pour H_2 . Dans les conditions expérimentales qui sont les nôtres (neutrons thermiques de 290° K et grand domaine de températures) un tel calcul n'est pas possible. Nous appliquerons donc le procédé indiqué plus haut.

a) Rotations.

La température caractéristique de rotation de la molécule d'azote $\Theta_{\text{rot}} = E_{\text{rot}}/k$ étant de 5,73° K, l'application de la formule (1) est certainement légitime pour les températures et les neutrons utilisés.

Pour calculer la contribution effective d'un noyau à la diffusion par rotation, il est nécessaire d'effectuer sur l'expression (1) la moyenne sur les directions d'incidence et les vitesses des molécules. L'ellipsoïde du tenseur de masse du noyau dans la molécule biatomique est suffisamment sphéroïdal ($M_1 = 2 M$, $M_2 = M_3 = M$) pour pouvoir être remplacé par une sphère ayant pour rayon la valeur moyenne des axes d'ellipsoïde soit: $M_l = \frac{1}{3} \Sigma M_i = \frac{4}{3} M =$ Masse effective. Dans ces conditions σ est indépendant de l'orientation de la molécule et la formule (1) se réduit à

$$\sigma = \sigma_{\infty} \left(\frac{M_e}{M_e + m} \right)^2 \frac{1}{v} |\vec{v} - \vec{u}|.$$

\vec{v} étant la vitesse du neutron et \vec{u} celle du noyau fictif de masse M_l dans le système de l'observateur. La moyenne sur le spectre de vitesses de la molécule conduit à l'expression:

$$\bar{\sigma} = \sigma_{\infty} \left(\frac{M_e}{M_e + m} \right)^2 \left[\left(1 + \frac{1}{2\xi^2} \right) \Phi(\xi) + \frac{1}{\sqrt{\pi}\xi} e^{-\xi^2} \right] \quad (5)$$

où

$$\xi^2 = \frac{M_e E_n}{m k T}, \quad \Phi(\xi) = 2\sqrt{\pi} \int_0^{\xi} e^{-x^2} dx,$$

T la température du gaz et E_n l'énergie des neutrons.

b) Vibrations.

La température caractéristique de vibration de l'azote $\Theta_{\text{vib}} = \hbar \omega / k$ est de 3380°K . Avec des neutrons thermiques de 290°K , pratiquement tous les chocs sont élastiques et la diffusion se calculera par la formule (4).

r étant la distance internucléaire d'équilibre (1,09 Å dans le cas de N_2) on aura:

$$\vec{b}_1 = (r/2, 0, 0) = -\vec{b}_2; \quad \delta \vec{R}_1 = (x/\sqrt{2}M, 0, 0) = -\delta \vec{R}_2.$$

c'est-à-dire

$$\vec{a}_1 = (1/\sqrt{2}M, 0, 0) = -\vec{a}_2$$

ensuite

$$\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = \varepsilon; \quad \alpha_1 = -\alpha_2 = \alpha.$$

L'élément de matrice (4) devient:

$$|M_{0,0}|^2 = \frac{4\sigma_0}{\mu^2} \cos^2 \left(rk\alpha \sin \frac{\vartheta}{2} \right) \cdot e^{-2\varepsilon \frac{m}{M} \alpha^2 \sin^2 \frac{\vartheta}{2}}.$$

Comme $2\varepsilon \frac{m}{M} = 2 \cdot 3/2 \cdot \frac{T_n}{\Theta_{\text{vib}}} \cdot \frac{m}{M} = 0,018 \ll 1$, on peut développer l'exponentielle et ne conserver que le terme linéaire.

La moyenne sur α et l'intégration sur ϑ conduisent pour la section de diffusion moléculaire relative aux vibrations à l'expression:

$$\sigma_{N_2} = 2 \frac{m^2}{\mu^2} \sigma_0 \left\{ 1 + 2 \frac{1 - \cos p}{p^2} - 2\varepsilon \frac{m}{M} \left[\frac{1}{6} - 12 \frac{1 - \cos p}{p^4} + 8 \frac{\sin p}{p^3} - 2 \frac{\cos p}{p^2} \right] \right\} \quad (6)$$

avec $p = 2\pi k = 4\pi \cdot r/\lambda$.

La contribution finale d'un noyau N à la section de diffusion moléculaire s'obtiendra en remplaçant σ_∞ dans l'expression de rotation (5) par $1/2 \bar{\sigma}_{N_2}$.

2° Eau.

a) Rotations.

Par suite de la grande dissymétrie des masses dans la molécule d'eau, le tenseur de masse du noyau H est lui-même fortement ellipsoïdal et il serait nécessaire d'employer la formule (1) exacte.

Cependant le calcul de la moyenne n'est possible sur (1) que par un développement en série valable dans le cas de H_2O pour des températures inférieures à 21,7° K, donc inaccessibles pour la phase gazeuse. Nous laisserons par conséquent ouverte la question de l'influence des rotations de la molécule sur la diffusion pour nous intéresser à la liaison-hydrogène dans le cristal.

b) Vibrations.

Dans des conditions normales de pression, le cristal H_2O possède une structure hexagonale telle que chaque oxygène est entouré par quatre autres oxygènes disposés suivant les sommets d'un tétraèdre. Les atomes H sont localisés sur les lignes de jonctions de chaque paire d'oxygènes, constituant vraisemblablement le cas le plus simple de liaison-hydrogène.

Nous supposons 1° que le proton est lié différemment suivant la direction de valence et suivant les directions perpendiculaires (anisotropie de révolution), 2° que le noyau O agit comme s'il était libre mais avec la masse totale de la molécule; cette hypothèse peut se justifier par le fait que la glace a une structure peu compacte.

La molécule d'eau vibre suivant trois fréquences normales simples; pour les deux premières l'une symétrique, l'autre anti-symétrique, les protons se meuvent approximativement suivant la direction O—H; pour la dernière, perpendiculairement à cette direction. Les températures caractéristiques sont respectivement 5170, 5400 et 2290° K. Ces fréquences sont peu affectées par la liaison cristalline.

Nous introduisons pour liaison anisotrope du proton deux fréquences moyennes: l'une dans la direction de valence (direction 1)

avec $\Theta_{\text{vib}} = 5300^\circ \text{K}$, l'autre transversalement (direction 2) avec $\Theta_{\text{vib}} = 2300^\circ \text{K}$.

Le problème de l'oscillateur anisotrope présente une dégénérescence simple; elle n'introduit pas de difficultés pour autant que le choc est élastique, ce qui est le cas ici puisque $\epsilon_1 = E_n/h\omega_1 = 0,082$ et $\epsilon_2 = E_n/h\omega_2 = 0,19$ sont < 1 . Nous appliquons la formule (4) avec

$$\vec{b}_j = 0, \quad \delta \vec{R} = \Sigma \vec{a}_l x_l = \left(\frac{x_1}{\sqrt{m}}, \frac{x_2}{\sqrt{m}}, \frac{x_3}{\sqrt{m}} \right)$$

donc

$$\vec{a}_1 = (m^{-1/2}, 0, 0), \quad \vec{a}_2 = (0, m^{-1/2}, 0), \quad \vec{a}_3 = (0, 0, m^{-1/2})$$

de plus $\epsilon_2 = \epsilon_3$ d'où:

$$|M_{0,0}|^2 = \frac{\sigma_0}{\mu^2} e^{-2(1-\cos\vartheta) [\epsilon_1 \alpha_1^2 + \epsilon_2 (\alpha_2^2 + \alpha_3^2)]}$$

et puisque $\mu = m/2$ et $\alpha_2^2 + \alpha_3^2 = 1 - \alpha_1^2$

$$d\sigma = d\Omega \frac{\sigma_0}{\pi} \cdot e^{-2(1-\cos\vartheta) [(\epsilon_1 - \epsilon_2) \alpha_1^2 + \epsilon_2]} \quad (7)$$

Comme nous mesurons la section totale de diffusion, et que d'autre part le cristal de glace employé est de structure polycristalline, nous faisons l'intégration sur ϑ (avec pour angle solide $d\Omega = 2\pi \sin\vartheta d\vartheta$) puis la moyenne sur α_1 obtenue en développant l'exponentielle jusqu'aux termes cubiques. On trouve: (avec $\bar{\epsilon} = \frac{1}{3} \epsilon_1 + \frac{2}{3} \epsilon_2$)

$$\bar{\sigma}_H = 4 \sigma_0 \left[1 - 2 \bar{\epsilon} + \frac{32}{15} \left(\bar{\epsilon} \epsilon_2 + \frac{1}{4} \epsilon_1^2 \right) - \frac{64}{35} \left(\bar{\epsilon} \epsilon_2^2 + \frac{1}{4} \epsilon_1^2 \epsilon_2 + \frac{5}{24} \epsilon_1^3 \right) + \dots \right] \quad (8)$$

Si le proton était lié de façon isotrope soit $\epsilon_1 - \epsilon_2 = \epsilon$, on aurait

$$\bar{\sigma}_{\text{isot}} = 2 \sigma_0 \int_0^\pi e^{-2\epsilon(1-\cos\vartheta)} \sin\vartheta d\vartheta,$$

et l'intégration étant immédiate:

$$\bar{\sigma}_{\text{isot}} = \frac{\sigma_0}{\epsilon} (1 - e^{-4\epsilon}). \quad (9)$$

Ces deux dernières formules (8) et (9) se trouvent dans l'article de BETHE¹⁰⁾.

Négligeant les rotations on obtiendra une expression pour la section de diffusion de la molécule dans le cristal en écrivant:

$$\bar{\sigma}_{\text{H}_2\text{O}} = 2 \bar{\sigma}_H + \sigma_{0x} \left(\frac{M}{M_0} \right)^2 \left(\frac{m + M_0}{m + M} \right)^2 \quad (10)$$

où σ_{0x} est la section efficace du noyau d'oxygène libre, M_0 sa masse soit $16 m$ et M celle de la molécule soit $18 m$.

3^o Phosphate de potassium.

La structure de ce cristal a été déterminée par rayons X par WEST¹⁸⁾. On peut la décrire de la façon indiquée par SLATER¹⁹⁾ dans un article sur la transition dans KH_2PO_4 .

Le réseau de structure tétragonale est formé de trois composantes: a) les groupes tétraédriques PO_4 où les 4 O occupent les sommets du tétraèdre et l'atome P le centre de gravité. Ces groupes sont disposés en réseaux bidimensionnels à maille carrée $a = b = 7,43 \text{ \AA}$, suivant des plans parallèles superposés. La disposition des groupes est différente dans deux plans consécutifs et se répète après quatre couches distantes de $c = 6,97 \text{ \AA}$.

b) Les atomes K constituent uniquement des éléments de liaison et occupent dans les plans définis plus haut le centre des mailles carrées des groupes PO_4 .

c) Enfin les atomes H, indécélables par rayons X, sont très probablement situés sur le segment O—O le plus court de deux groupes PO_4 voisins et constituent ainsi les liaisons-hydrogènes caractéristiques de la substance. On doit s'attendre à ce qu'en moyenne deux protons soient dans le voisinage de deux oxygènes d'un groupe phosphaté formant un ion $(\text{H}_2\text{PO}_4)^-$, les groupements $(\text{HPO}_4)^{--}$ et (H_3PO_4) supposés moins favorables énergétiquement étant très improbables. La figure suivante indique schématiquement la structure du cristal.

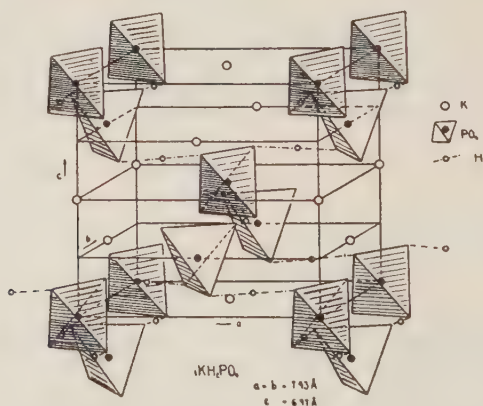


Fig. 1.

Les distances entre atomes sont les suivantes:

Groupe PO_4 : O—O = 2,55 Å P—O = 1,39 Å

Plus courte distance entre deux oxygènes de groupes PO_4 adjacents:

O—O' = 2,54 Å et distance K—O = 2,82 Å.

Pour étudier le comportement des liaisons-hydrogènes dans la diffusion des neutrons, il est nécessaire d'estimer de façon quantitative l'influence des autres éléments du cristal.

La décomposition en trois composantes indique la marche à suivre. Nous ferons les hypothèses suivantes qui semblent devoir fournir une approximation suffisante:

1⁰ Les trois composantes se comportent de façon indépendante.

2⁰ Les atomes K forment un réseau suffisamment lâche pour pouvoir être considérés comme libres (distance K—K $\geq 4,1$ Å).

3⁰ Il en est de même du réseau des PO₄. On tiendra compte des vibrations internes du groupe (infra-rouges) et de rotations éventuelles.

4⁰ Les protons se comportent comme des oscillateurs harmoniques à liaison anisotrope de façon analogue aux atomes H de l'eau.

Cette dernière supposition est plutôt hardie puisque nos connaissances de cette liaison-hydrogène sont très limitées: ce sera notre hypothèse de travail.

Les quatre points ci-dessus reviennent à négliger les interférences autres que celles pouvant se produire entre les éléments d'un même groupe PO₄.

Examinons les composantes du réseau dans l'ordre croissant de complexité.

Les points 1⁰ et 2⁰ permettent d'écrire:

$$\sigma_{\text{KH}_2\text{PO}_4} = \sigma_{\text{K}} + 2 \bar{\sigma}_{\text{H}} + \bar{\sigma}_{\text{PO}_4}$$

où σ_{K} est simplement la section de diffusion d'un noyau K libre et initialement au repos.

$\bar{\sigma}_{\text{H}}$ doit être déterminé dans les trois cas suivants:

Direction moyenne d'incidence pour la mesure avec la poudre de cristal; direction parallèle à la liaison de valence O—H—O et direction perpendiculaire à cette liaison pour la mesure avec le monocristal.

A moins d'une liaison protonique très faible (longueur d'onde correspondante: $\lambda \gtrsim 30 \mu$), ce qui n'est pas probable, on peut se limiter aux collisions élastiques. Le cas de la poudre de cristal est alors résolu par la formule (8).

Pour le calcul des deux autres cas, nous introduisons l'angle d'incidence β entre le vecteur \vec{k} et la direction O—H—O. Choissant un système de référence dont l'axe z est parallèle à \vec{k} et désignant par φ l'azimut de la direction $\vec{k} - \vec{k}'$, on devra alors remplacer α_1 dans l'expression (7) par $\sin \beta \cos \vartheta/2 \cos \varphi + \cos \beta \sin \vartheta/2$ et intégrer avec $d\Omega = \sin \vartheta d\varphi d\vartheta$ sur φ et ϑ .

En spécifiant pour $\beta = 0$ et $\beta = \pi/2$, on obtient de façon analogue au passage de (7) à (8):

$$\sigma_H(\beta = 0) = 4\sigma_0 \left[1 - 2\varepsilon_2 - \frac{4}{3}(\varepsilon_1 - \varepsilon_2) + \frac{8}{3}\varepsilon_2^2 + 4\varepsilon_2(\varepsilon_1 - \varepsilon_2) + \frac{8}{5}(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)^2 - \frac{8}{3}\varepsilon_2^3 - \frac{32}{5}\varepsilon_2^2(\varepsilon_1 - \varepsilon_2) - \frac{16}{3}\varepsilon_2(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)^2 - \frac{32}{21}(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)^3 + \dots \right]$$

et

$$\sigma_H\left(\beta = \frac{\pi}{2}\right) = 4\sigma_0 \left[1 - 2\varepsilon_2 - \frac{1}{3}(\varepsilon_1 - \varepsilon_2) + \frac{8}{3}\varepsilon_2^2 + \frac{2}{3}\varepsilon_2(\varepsilon_1 - \varepsilon_2) + \frac{1}{10}(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)^2 - \frac{8}{3}\varepsilon_2^3 - \frac{4}{5}\varepsilon_2^2(\varepsilon_1 - \varepsilon_2) - \frac{1}{5}\varepsilon_2(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)^2 - \frac{1}{42}(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)^3 + \dots \right].$$

L'orientation moyenne des groupes PO_4 suivant les directions a (ou b) et c est pour l'ensemble du cristal la même. Suivant a , la moitié des liaisons O—H—O est pratiquement parallèle, l'autre moitié perpendiculaire; suivant c , toutes sont perpendiculaires à la direction d'incidence. Dans ces conditions, les sections de diffusion par molécule KH_2PO_4 s'écrivent:

$$\text{Direction } a: \sigma_a = \sigma_K + \bar{\sigma}_{\text{PO}_4} + \sigma_H\left(\frac{\pi}{2}\right) + \sigma_H(0)$$

$$\text{Direction } c: \sigma_c = \sigma_K + \bar{\sigma}_{\text{PO}_4} + 2\sigma_H\left(\frac{\pi}{2}\right)$$

et la différence:

$$\sigma_a - \sigma_c = \sigma_H(0) - \sigma_H\left(\frac{\pi}{2}\right)$$

soit

$$\sigma_a - \sigma_c = 4\sigma_0(\varepsilon_1 - \varepsilon_2) \left[1 + \frac{3}{2}(\varepsilon_2 - \varepsilon_1) - \frac{10}{3}\varepsilon_2 + \frac{63}{42}(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)^2 - \frac{77}{15}\varepsilon_2(\varepsilon_2 - \varepsilon_1) + \frac{28}{5}\varepsilon_2^2 + \dots \right] \quad (11)$$

Suivant la valeur de ε_2 il semble qu'on puisse s'attendre à des effets directionnels allant jusqu'à 7 ou 8%, donc décelables par des mesures minutieuses.

Groupes phosphatés.

a) Rotations.

Il y a deux cas limite calculables, celui de la rotation totalement freinée, voisin probablement de la réalité, et celui de la rotation libre des groupes PO_4 .

On voit facilement que pour ce dernier cas la formule (5) est applicable à toute température, par suite du grand moment d'inertie ($\Theta_{\min} = 173 \cdot 10^{-40}$ gr./cm²) et de la symétrie du groupe.

On obtient: $(\bar{\sigma}_P)_{\text{PO}_4} = 1,04 \sigma_P$; $(\bar{\sigma}_{0x})_{\text{PO}_4} = 1,08 \sigma_{0x}$.

b) Vibrations.

La molécule tétraédrique du type XY_4 possède 9 degrés de liberté internes, mais seulement 4 fréquences de vibration différentes comme l'a montré d'abord DENNISON²⁰). Il y a donc une dégénérescence d'ordre 5. Les fréquences expérimentales attribuées aux vibrations normales de PO_4 sont d'après KOHLRAUSCH²¹):

$$\begin{aligned} \nu_1 &= 980 \text{ cm}^{-1} (0,12 \text{ eV}), \quad \nu_{2,3} = 363 \text{ cm}^{-1} (0,04 \text{ eV}) \\ \nu_{4,5,6} &= 515 \text{ cm}^{-1} (0,06 \text{ eV}), \quad \nu_{7,8,9} = 1082 \text{ cm}^{-1} (0,13 \text{ eV}). \end{aligned}$$

Par suite de la grande masse des noyaux O et P, ces vibrations ne sont pas très effectives pour la diffusion des neutrons lents et nous pouvons nous borner au calcul de l'effet dû à ω_{23} (0,04 eV).

En admettant que les neutrons d'énergie moyenne $3/2 T_n - 0,037$ eV sont incapables d'exciter le premier niveau de vibration c'est-à-dire que tous les chocs sont élastiques, on commet une certaine erreur puisque le spectre s'étend, au delà de l'énergie moyenne, jusqu'à 0,2 eV env. (limite d'absorption de Cd). Le calcul de la fraction des neutrons actifs pour une collision inélastique ne donne pourtant que 25%. Nous négligerons cet effet.

A partir de la formule (4) on obtient pour le tétraèdre en posant

$$f_j = \frac{\lambda_j}{\mu_j} e^{-2m \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \sum_l \epsilon_l a_{il}^2 \alpha_{il}^2}$$

(f_j = facteur de structure atomique)
 $j = 1 \dots 4$ pour les O $j = 5$ pour P.

$$|M_{0,0}|^2 = \sum_j^5 \bar{f}_j^2 + 2 f_5 \sum_j^4 f_j \cos(k-k') \vec{e} \vec{b}_j + 2 \sum_{i < j}^4 f_i f_j \cos(k-k') \vec{e} (\vec{b}_j - \vec{b}_i)$$

avec $\vec{e} = (\vec{k} - \vec{k}') / (k - k')$.

Pour effectuer la moyenne sur les directions d'incidence (diffusion par la poudre de cristal) nous admettons, ce qui n'est vrai qu'approximativement que les f_j sont indépendants des angles $(\vec{k} - \vec{k}', \vec{b}_j)$. Avec cette hypothèse on peut écrire:

$$|M_{0,0}|^2 = \sum_j^5 \bar{f}_j^2 + 2 \frac{\sin\left(\frac{2}{3} \sqrt{\frac{2}{3}} P\right)}{\frac{2}{3} \sqrt{\frac{2}{3}} P} \sum_j^4 f_j \bar{f}_5 + 2 \frac{\sin P}{P} \sum_{i < j}^4 \bar{f}_i \bar{f}_j$$

où

$$\bar{f}_i \bar{f}_j \cong \frac{\lambda_i \lambda_j}{\mu_i \mu_j} \left[1 - \frac{2}{3} m \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \sum_e \epsilon_e (a_{il}^2 + a_{jl}^2) \right].$$

$$P = 2ka \sin \vartheta/2 \quad \text{et} \quad a = \text{arête du tétraèdre.}$$

*

Cette formule est analogue à celle bien connue, valable pour la diffraction des rayons X ou des électrons par une molécule tétraédrique (par exemple CCl_4). Cependant dans ces deux cas l'expression ci-dessus est multipliée par un facteur proportionnel à $(k \sin \vartheta/2)^{-4}$ ayant pour résultat de faire tomber rapidement la diffusion incohérente (premier terme) en même temps que la diffusion cohérente quand la longueur d'onde des particules incidentes diminue. Dans le cas des neutrons, nous voyons par contre que, en raison du facteur P^{-1} , les termes d'interférence ont tendance à disparaître devant la partie incohérente de la diffusion.

La vibration correspondant à $\nu_{2,3}$ est un mouvement de torsion du tétraèdre pouvant se décrire par la rotation autour de leur droite d'intersection de deux plans passant par deux sommets et le centre du tétraèdre. Par conséquent

$$a_{3l} = 0; \quad \sum_e \varepsilon_e a_{il}^2 = \varepsilon/M_0 \quad \text{avec} \quad \varepsilon = F_n/\hbar \omega_{23} \quad \text{et} \quad M_0 = \text{Masse de O.}$$

En intégrant l'élément de matrice sur ϑ , on obtient finalement pour section totale de diffusion d'un groupe PO_4 , en moyenne sur toutes les directions d'incidence:

$$\begin{aligned} \bar{\sigma}_{\text{PO}_4} = 2 m^2 \left\{ \frac{\sigma_P}{2 \mu_P^2} + 4 \frac{\sigma_0}{\mu_0^2} \left(\frac{1}{2} - \frac{m\varepsilon}{3 M_0} \right) + 6 \frac{\sigma_0}{\mu_0^2} \frac{2(1 - \cos p)}{p^2} \right. \\ \left. + \frac{4 \sqrt{\sigma_0 \sigma_P}}{\mu_0 \mu_P} \frac{2(1 - \cos q)}{q^2} - \frac{4}{3} \frac{m}{M_0} \varepsilon \left[12 \frac{\sigma_0}{\mu_0^2} \frac{2p \sin p - (p^2 - 2) \cos p - 2}{p^4} \right. \right. \\ \left. \left. + \frac{4 \sqrt{\sigma_0 \sigma_P}}{\mu_0 \mu_P} \frac{2q \sin q - (q^2 - 2) \cos q - 2}{q^4} \right] \right\} \quad (12) \end{aligned}$$

$$\text{avec } p = 2ka \text{ et } q = 2k \cdot (2/3) \sqrt{2/3} a.$$

Comme $a = \text{O—O} = 2,55 \text{ \AA}$ et $k = \frac{\bar{p}}{\hbar} = 3,93 \text{ \AA}^{-1}$, on voit que le dernier terme contenant $4 m \varepsilon/3 M_0 = 0,07$ est pratiquement négligeable.

V. Dispositif expérimental et marche des mesures.

Le dispositif utilisé a déjà été essentiellement décrit ailleurs²¹⁾ et en particulier pour N_2 :⁸⁾. Nous en donnons un schéma dans la figure suivante:

La source de neutrons est fournie par $300 \text{ mC Rn} + \text{Be}$. La détection est assurée par chambre de bore et amplificateur suivi d'un démultiplicateur « scale of two » et compteur mécanique.

La substance diffusante est contenue dans un boîtier de laiton à bords renforcés et à parois minces (1 mm), mais suffisamment rigides pour éviter, dans le cas de H_2O , toute déformation en cours de solidification. Ce boîtier est à l'intérieur d'un récipient isolant de forme appropriée à double paroi d'alliage « Neusilber » et peut être déplacé verticalement, dans un guide étanche solidaire du récipient, par une tige creuse également de Neusilber.

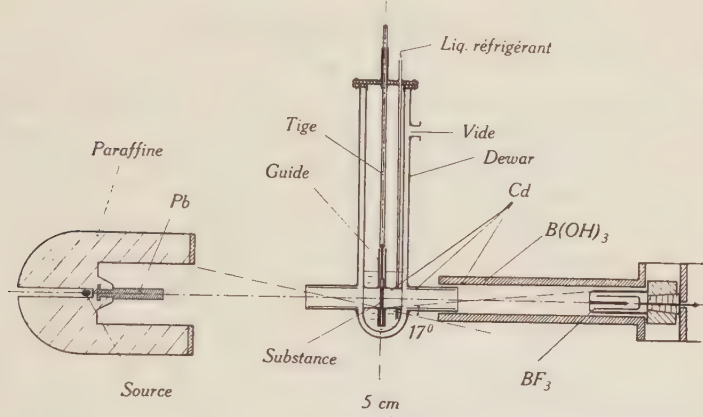


Fig. 2.

Les fenêtres de laiton mince (0,3 mm) sont disposées de part et d'autre à l'extrémité de tubes isolants de Neusilber pour éviter la formation éventuelle de buée.

Nous avons pris grand soin à l'optique du système, renforçant la collimation par des diaphragmes de Cd en dépit de l'affaiblissement considérable du courant neutronique. L'angle extrême d'indétermination est ainsi ramené à 17° seulement et la divergence du faisceau pénétrant dans la chambre de bore à moins de 3° . Le blindage est constitué par des écrans de Cd et d'acide borique.

Les températures étaient mesurées par un couple thermoélectrique cuivre-constantan soudé au porte-substance.

Pour éviter toute erreur due à des variations de sensibilité de l'enregistrement et à la diminution d'intensité de la source, les mesures se faisaient en cycles de 20 min. soit 4 fois 5 min. alternativement avec ou sans substance diffusante et avec ou sans écran absorbant de Cd.

A partir des 4 nombres mesurés se calcule la transmission exp ($-\sigma nd$). La connaissance de la densité (en gr./cm²) de la substance diffusante employée permet le calcul de nd et ensuite de σ . Dans

presque tous les cas nd pouvait se déterminer avec une erreur inférieure à 0,8%, par conséquent négligeable devant l'erreur statistique de σ . Cette dernière (erreur quadratique moyenne sur la base de la statistique de Poisson) est celle que nous indiquons dans nos résultats. Les valeurs données pour σ sont des moyennes de séries statistiques comportant chacune un nombre total de neutrons enregistrés de l'ordre de 25 000.

VI. Résultats et discussion.

1° Azote.

Nous résumons les résultats obtenus pour N_2 et déjà publiés⁸⁾ dans le tableau et le graphique suivants:

T (°K)	$\sigma_{\text{tot}} \cdot 10^{24}$ (cm ²)	$\sigma_{\text{diff}} \cdot 10^{24}$ (cm ²)	$\frac{\sigma_{\text{diff}}}{\sigma_{\text{tot}}}$
300° gaz	$12,2 \pm 0,2^*)$	$11,0 \pm 0,3$	100
125° gaz	$12,3 \pm 0,7$	$11,1 \pm 0,8$	101
100° liq.	$10,8 \pm 0,4$	$9,6 \pm 0,5$	87
65° liq.	$9,7 \pm 0,3$	$8,5 \pm 0,4$	78
60° sol.	$9,9 \pm 0,2$	$8,7 \pm 0,3$	79
40° sol.	$10,5 \pm 0,6$	$9,3 \pm 0,7$	84
20° sol.	$11,4 \pm 0,5$	$10,2 \pm 0,6$	92

*) Valeur indiquée par CARROL⁵⁾.

La section de capture a été prise égale à $1,2 \cdot 10^{-24}$ cm², valeur mesurée par LAPOINTE et RASETTI²³⁾.

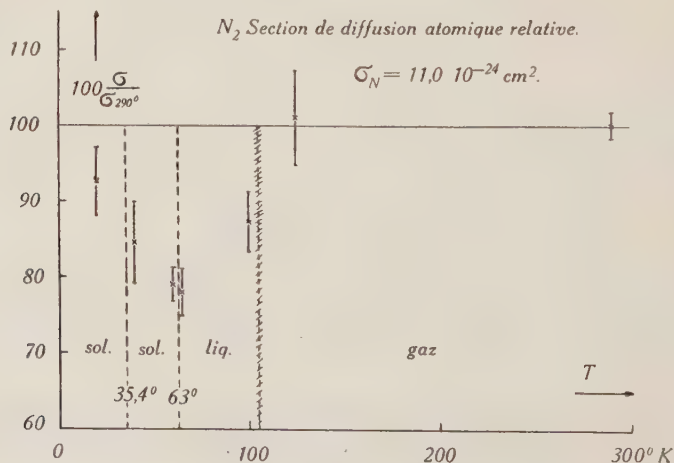


Fig. 3.

Pour l'état gazeux nous employons les équations (5) et (6) et obtenons :

$$\bar{\sigma}_N = 1,09 \sigma_0.$$

La valeur mesurée de $\frac{1}{2} \bar{\sigma}_{N_2}$ soit $11,0 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ permet de calculer la section de diffusion du noyau libre et initialement au repos, grandeur purement nucléaire :

$$\sigma_0 = 10,0 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

Il est difficile d'interpréter la chute de σ à la liquéfaction de même que l'accroissement au point de transition du solide à $35,4^\circ \text{ K}$.

Comme nous l'avons déjà vu⁸⁾, les distances intermoléculaires du liquide et du solide de 4 \AA environ ne semblent pas permettre d'expliquer la diminution de σ par rapport au gaz par des phénomènes d'interférence agissant sur les neutrons thermiques dans le sens indiqué par RASETTI²⁾, surtout que le diffuseur solide a très probablement une structure polycristalline. La formule (6) indique pour N_2 une contribution de diffusion cohérente de $+4\%$ seulement, pour une distance interatomique de $1,1 \text{ \AA}$ alors que les effets des transitions sont de -13% et $+8\%$ respectivement.

(Remarquons que l'augmentation de la diffusion moléculaire moyenne due aux termes cohérents n'est pas incompatible avec la diminution pouvant se produire pour une structure cristalline et un spectre de neutrons où les conditions sélectives de BRAGG sont déterminantes.)

D'après la loi de proportionnalité de σ et du carré de la masse réduite, on déduit (indépendamment des interférences et des rotations) que $\sigma_\infty = 1,14 \sigma_0$, donc σ devrait être supérieur — au maximum de 14% — à σ_0 et non pas inférieur comme nous l'observons. L'influence des rotations — environ 4% sur σ_0 — paraît d'autre part trop faible pour fournir une explication satisfaisante.

Nous avons par conséquent reconsidéré nos mesures et la possibilité d'une erreur. La seule grandeur critique est la valeur de $n \cdot d$ à l'état liquide et solide. Ce nombre a été déterminé en mesurant le volume du gaz fourni par la substance en se vaporisant. Pour le liquide la mesure se contrôlait en comparant les densités ainsi déterminées aux différentes températures avec la courbe densité-température connue pour N_2 . La concordance était excellente. Pour le solide la densité mesurée après chaque série de mesures correspondait chaque fois à celle du liquide à la température de solidification, indiquant une structure lacunaire du solide. Même si l'on suppose que toute la substance est concentrée dans la partie

inférieure de la chambre de diffusion, ce qui est peu probable, il est facile de voir que l'erreur commise sur σ ne peut excéder 4%.

Dans ces conditions il ne semble pas possible d'interpréter la diminution observée de σ dans le cadre théorique disponible et nous nous bornerons à enregistrer l'influence prononcée sur la diffusion de deux des transitions étudiées.

2° Eau.

Le tableau suivant donne les valeurs mesurées à différentes températures de la section de diffusion moléculaire de H_2O .

Etat	Temp.	Densité (g/cm ³)	$n/\text{cm}^3 \cdot 10^{22}$	$T^{-1} = e^{n\sigma d}$	$\sigma_{H_2O} \cdot 10^{24}$ (cm ²)
liq.	19° C	0,998	3,34	$2,74 \pm 0,09$	$85,5 \pm 2,9$
	0° C	0,999	3,34	$2,70 \pm 0,09$	$84,2 \pm 3,0$
sol.	- 2° C	0,917	3,06	$2,52 \pm 0,09$	$85,4 \pm 3,5$
	- 79° C	0,922*)	3,08	$2,37 \pm 0,08$	$79,0 \pm 3,2$
	- 196° C	0,930*)	3,11	$2,75 \pm 0,11$	$91,5 \pm 3,8$

*) Valeurs interpolées à partir des données de LANDOLT-BÖRNSTEIN.

L'épaisseur de la matière diffusante dans le porte-substance était $d = 0,355 \pm 0,005$ cm.

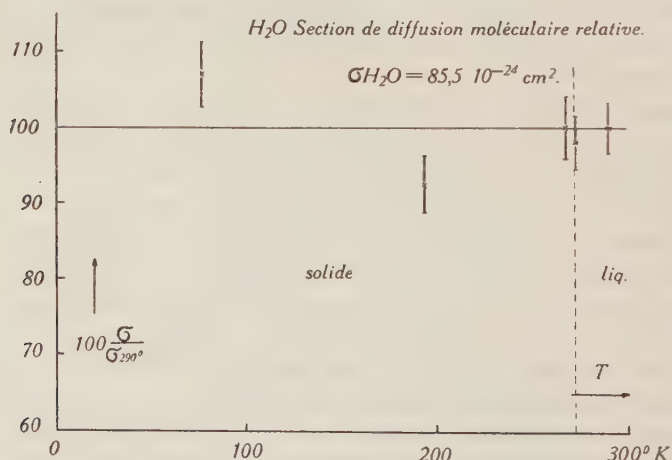


Fig. 4.

Nous avons reporté dans le graphique ci-dessus les valeurs relatives de la section par molécule, rapportées à la section à 19° C.

Comme dans le cas de N_2 les neutrons sont insensibles à la transition liquide-solide ce qui indiquerait une structure peu différente

dans les deux phases. Pour l'état solide, la diffusion moléculaire a tendance à diminuer d'abord avec la température pour remonter ensuite vers 77° K accusant une variation de 15% env.

Un calcul de $\sigma_{\text{H}_2\text{O}}$ pour l'état solide peut se faire par les formules (8) et (10). On obtient:

$$\bar{\sigma}_{\text{H}_2\text{O}} = 61,60 \sigma_{\text{H}} + 1,01 \sigma_{\text{Ox}}.$$

Pour la section efficace nucléaire σ_{H} on prendra la valeur aujourd'hui bien assurée de $20 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$. Celle de l'oxygène peut se déduire par les formules (5) et (6) de la mesure effectuée par CARROL⁵⁾ sur le gaz à température normale: $\sigma = 4,12 \cdot 10^{-22} \text{ cm}^2$. On trouve: $\sigma_{\text{Ox}} = 3,49 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$. (Pour O_2 , distance internucléaire $r = 1,20 \text{ \AA}$, $\theta_{\text{vib}} = 2260^\circ \text{ K}$ et section de capture négligeable.)

Ces valeurs introduites dans l'expression ci-dessus donnent:

$$\bar{\sigma}_{\text{H}_2\text{O}} = 126,7 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

Ce nombre dépasse de beaucoup la valeur expérimentale.

Essayons d'estimer grossièrement l'influence de rotations libres de la molécule au moyen de la formule (5) où l'on exclut les mouvements thermiques en posant $\xi = \infty$. Prenant, en dépit de la forte dissymétrie des masses pour le proton, une masse effective $M_l = 4/3 m$, et pour le noyau d'oxygène $M_l = 17,06 m$, on obtient:

$$\bar{\sigma}_{\text{H}_2\text{O}} = 78,5 \cdot 10^{-22} \text{ cm}^2.$$

Ce nombre est maintenant inférieur aux valeurs expérimentales. Il semble donc qu'on puisse conclure à une certaine liberté de rotation de la molécule H_2O dans le solide comme dans le liquide. Ce résultat s'accorde avec les données connues sur la glace (mesures thermiques et diélectriques). PAULING²⁴⁾ admet l'existence de différents arrangements des H autour d'un O compatibles avec la structure cristalline et énergétiquement équivalents. Dans une certaine mesure ces modifications représentent une mobilité de rotation limitée de la molécule dans le cristal. Cette mobilité changeant avec la température peut fournir une explication de la variation constatée pour σ .

3° Phosphate de potassium.

Les mesures avec le monocristal nécessitaient des plaques cristallines d'une surface active de 35 mm de diamètre et d'une épaisseur de l'ordre de 10 mm.

Comme il est impossible d'obtenir des cristaux d'aussi grandes dimensions, nous avons constitué une *première paire de plaques*, en juxtaposant des parties découpées dans deux cristaux différents perpendiculairement à l'axe a et à l'axe c . Malheureusement on court ainsi le risque d'avoir une surface présentant des domaines où la structure mosaïque n'est pas la même et de plus différente pour la plaque a et la plaque c , ce qui tend à diminuer et fausser l'effet directionnel attendu.

Pour éviter cet inconvénient, nous avons prévu une *deuxième paire de plaques* en découpant dans un unique cristal, particulièrement bien développé et exempt de défauts, 5 barres prismatiques égales de section carrée ayant deux faces opposées perpendiculaires à c , les deux autres faces par conséquent perpendiculaires à a . En les accolant on obtient une première fois la plaque pour la direction c et en tournant chaque barre de 90° la plaque pour la direction a .

Les plaques ainsi obtenues de $35 \times 38 \times 8$ mm environ étaient maintenues dans un boîtier de cadmium de mêmes dimensions intérieures, muni sur des faces opposées d'une ouverture circulaire de 35 mm de diamètre définissant la surface cristalline efficace. Quand le boîtier était en position pour la mesure, la circonférence coïncidait exactement avec les ouvertures de même diamètre des cylindres de cadmium du système de collimation. (Voir schéma du dispositif).

La grandeur fournie directement par les mesures est la transmission T . Pour que l'on puisse parler de section efficace dans le cas du monocristal et que celle-ci puisse se déterminer, il faut que la loi de variation avec l'épaisseur d soit exponentielle: $T = \exp(-n\sigma d)$. On peut admettre qu'il en est bien ainsi (Rasetti²) pour les épaisseurs relativement grandes utilisées (~ 8 mm). Cependant comme contrôle nous avons déterminé la transmission d'une *troisième plaque cristalline* de 6 mm seulement d'épaisseur, suivant l'axe a et à température normale.

Quand le monocristal est refroidi au-dessous de son point de Curie, sa structure mosaïque a tendance à augmenter, modifiant ainsi les propriétés diffusantes du cristal. Afin d'évaluer cet effet nous avons dans chaque cas mesuré la transmission à 290° K avant et après refroidissement. Les valeurs obtenues étaient toujours cohérentes aux erreurs près indiquant une influence négligeable de la modification de structure mosaïque.

Il se peut que contrairement à notre attente, une certaine composante cohérente participe à la diffusion du monocristal, ayant pour effet de diminuer quelque peu la valeur de la section efficace.

Pour cette raison nous n'avons utilisé les résultats obtenus avec le monocristal que pour déterminer la différence $\sigma_a - \sigma_c$.

Afin d'évaluer l'effet d'interférences éventuel et pour disposer d'une valeur de σ plus compatible avec nos hypothèses de calcul, nous avons employé pour une série de mesures au-dessus et au-dessous du point de Curie, de la poudre de cristal de très grande finesse (grosueur moyenne des grains de 0,003 mm mesurée au microscope).

Les résultats des différentes mesures sont donnés dans le tableau suivant.

Direction	T (°K)	$\epsilon^{\mu d}$	μ (cm ⁻¹)	$\sigma \cdot 10^{24}$ (cm ²)
1res plaques	a 290	$2,26 \pm 0,12$	$1,01 \pm 0,06$	$97,5 \pm 6,0$
	c 290	$2,18 \pm 0,09$	$0,95 \pm 0,05$	$91,9 \pm 4,8$
	a 77	$2,21 \pm 0,10$	$0,98 \pm 0,06$	$93,2 \pm 5,5$
	c 77	$2,20 \pm 0,08$	$0,98 \pm 0,04$	$93,6 \pm 4,2$
2es plaques	a 290	$2,56 \pm 0,07$	$1,10 \pm 0,03$	$106,7 \pm 3,2$
	c 290	$2,39 \pm 0,06$	$1,05 \pm 0,03$	$101,1 \pm 3,2$
	a 77	$2,48 \pm 0,08$	$1,06 \pm 0,03$	$101,4 \pm 3,4$
	c 77	$2,37 \pm 0,07$	$1,03 \pm 0,03$	$99,0 \pm 3,4$
3e plaque	a 290	$1,88 \pm 0,06$	$1,00 \pm 0,05$	$96,7 \pm 4,7$
poudre	— 290	$1,97 \pm 0,07$	—	$111,8 \pm 6,3$
	— 77	$1,92 \pm 0,06$	—	$107,2 \pm 6,2$

Epaisseurs: 1res plaques $d_a = 8,10$ mm. $d_c = 8,19$ mm.

2mes plaques $d_a = 8,51$ mm. $d_c = 8,35$ mm.

3me plaque $d_a = 6,30$ mm.

poudre $d = 8,00$ mm. $nd = 6,08 \cdot 10^{21}$ cm⁻².

Toutes les épaisseurs sont certainement exactes à moins de 0,6%.

Les valeurs données dans le tableau ainsi que les erreurs statistiques sont arrondies à la 2e décimale.

La densité du cristal à 290° K a été prise égale à 2,34. Pour la valeur de nd du monocristal à 77° K nous avons tenu compte de la contraction, au moyen des coefficients thermiques indiqués pour KH₂PO₄ par MASON²⁵); la variation est de 1,6% pour la direction a et de 1,2% pour la direction c .

Une première constatation est la différence systématique de 8% environ entre les résultats du premier et du deuxième cristal. Une explication possible réside pour une part dans une différence de densité entre les cristaux. Nous avons employé pour le calcul de

σ une densité moyenne de 2,34 gr./cm². Il est probable que les premières plaques taillées dans des cristaux moins homogènes et moins parfaits que les secondes ont une structure lacunaire et par conséquent une densité un peu plus faible, mais difficilement de plus de 2%.

L'influence directe sur la diffusion d'une irrégularité de structure (qui d'ailleurs aurait tendance à agir en sens inverse) est à rejeter. En effet, on voit que la poudre de cristal donne une section efficace d'environ 5% plus grande seulement que le monocristal. Cette différence sort à peine de la limite d'erreurs et indique que la diffusion ne présente qu'une faible composante cohérente.

La troisième plaque découpée dans un matériel de même qualité et constituée de même façon que les premières est de 17% plus mince pour la direction a . Elle donne la même section efficace à 1% près, ce qu'on peut considérer comme une confirmation de la loi de transmission exponentielle pour le monocristal.

Les résultats relatifs au 2e cristal sont, pour les raisons indiquées, les plus sûrs et c'est pourquoi nous les avons déterminés avec une plus grande précision.

Pour la discussion de la liaison-hydrogène, nous employons les données suivantes:

Pour 290° K, l'effet directionnel est le même pour les deux cristaux et est représenté par la différence:

$$\sigma_a - \sigma_c = (5,6 \pm 4,4) \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

Malgré la forte erreur inévitable, on peut conclure à une anisotropie de la liaison. Anisotropie et liaison peuvent se déterminer si l'on complète la valeur ci-dessus par celle de la section efficace de la poudre cristalline

$$\bar{\sigma} = 111,8 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

Pour 77° K, la différence $\sigma_a - \sigma_c$ est beaucoup plus faible que les erreurs et tend à disparaître, d'où on conclut à une liaison pratiquement isotrope. On constate de plus une diminution générale des sections efficaces, ce qui s'interprète par une diminution de la force de liaison. On prendra pour caractéristique la valeur fournie par la poudre, soit

$$\bar{\sigma} = 107,2 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

L'application des formules du § IV. 3 nécessite la connaissance des sections efficaces purement nucléaires σ_K , σ_H , σ_P et σ_{Ox} .

σ_H et σ_{Ox} ont déjà été indiqués.

Pour σ_K les valeurs connues ne sont malheureusement pas très cohérentes; nous prendrons celle mesurée par DUNNING et collaborateurs²²⁾ σ_K (diff. + capt.) = $8,2 \cdot 10^{-26}$ cm².

Pour σ_P , les discrepancies considérables entre les mesures publiées nous ont décidé à en redéterminer la valeur. Le résultat de notre mesure effectuée sur du phosphore amorphe en poudre compacte est:

$$\sigma_P = (8,77 \pm 0,76) \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

Comme d'après LAPOINTE et RASETTI²³⁾ et surtout VOLZ²⁷⁾ la section de capture est faible — 1,0 et $0,23 \cdot 10^{-24}$ cm² respectivement — donc inférieure à notre erreur, nous identifions la valeur ci-dessus avec la section de diffusion pure.

La formule (12) donne alors pour la contribution des groupes phosphatés (unité: 10^{-24} cm²): $\sigma_{PO_4} = 24,6$.

(L'influence de rotations libres des groupes PO_4 ou même PO_4H_2 dont on pourrait tenir compte par les expressions déduites au § IV. 3, est minime comme on peut le voir facilement; nous négligerons cet effet en soi d'ailleurs très improbable.)

De ce résultat et des valeurs expérimentales pour KH_2PO_4 en poudre, on déduit:

$$\text{à } 290^\circ \text{ K: } \sigma_H = 39,6 \text{ et à } 77^\circ \text{ K: } \sigma_H = 37,2.$$

Ces valeurs de la section du proton dans KH_2PO_4 ($M = 136$) sont nettement inférieures à celles obtenues par CARROL⁵⁾ pour la liaison protonique dans les hydrocarbures et comprises entre 45,4 pour le méthane CH_4 ($M = 16$) et 49,8 pour la paraffine $C_{22}H_{46}$ ($M = 310$). De même σ_H calculé pour l'eau ($M = 18$), en supposant, comme pour les hydrocarbures, l'additivité des sections efficaces nucléaires, donne une valeur plus grande, soit 41,0 (la valeur de CARROL 44,6 est quelque peu supérieure à la nôtre).

Il semble donc bien que la liaison du proton dans le phosphate de potassium est définitivement plus faible que dans d'autres substances.

Pour avoir un cas supplémentaire de comparaison, nous avons mesuré la section de diffusion dans le carbonate acide de potassium $KHCO_3$ ($M = 100$), substance possédant aussi une liaison-hydrogène et présentant comme H_2O une analogie avec KH_2PO_4 . Le résultat de la mesure effectuée sur la substance en poudre (1,208 gr./cm²) est:

$$\bar{\sigma}_{KHCO_3} = (68,5 \pm 4,2) \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

En prenant $\sigma_c = 4,5 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ et les valeurs déjà indiquées pour les autres sections efficaces, on obtient $\sigma_H = 45,3$, soit une valeur de nouveau distinctement supérieure à la section dans KH_2PO_4 .

La grandeur et l'anisotropie de la liaison étudiée se calculeront par les formules (8) et (11) et les valeurs données plus haut de $\sigma_a - \sigma_c$ et de $\bar{\sigma}_H$.

On obtient un système de deux équations du 3^e degré à deux inconnues ε_1 et ε_2 . Le calcul se fait par approximations successives et donne les résultats rassemblés dans le tableau ci-dessous :

T	Direction	ε	$\nu \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	$\lambda \text{ (}\mu\text{)}$	$f = \omega^2/m$ (dyn/cm)
290° K	(1) parall. O—H—O . .	0,42	720	13,9	$29,9 \cdot 10^3$
	(2) perpend. O—H—O .	0,52	580	17,2	$19,4 \cdot 10^3$
77° K	(1) equiv. (2)	0,56	540	18,5	$16,8 \cdot 10^3$

Au-dessus du point de Curie, l'anisotropie que nous pouvons définir par $(f_1 - f_2)/f_1$ serait d'après ces résultats de 35 %. L'erreur considérable sur $\sigma_a - \sigma_c$ ne permet pas d'accorder une très grande signification à cette valeur que nous considérons comme une première indication.

La diminution ou disparition de l'anisotropie au-dessous du point de transition semble conciliable avec les vues de SLATER sur le mécanisme de polarisation expliqué par un déplacement des H vers une position plus voisine des PO_4 . La répartition des charges autour des protons peut être alors plus uniforme.

La valeur moyenne de la liaison elle-même devrait être assurée à moins de 10 %. La longueur d'onde particulièrement grande qui lui correspond est en accord d'une part avec les mesures d'absorption infra-rouge qui indiquent un domaine caractéristique probable supérieur à 4μ , d'autre part avec les conclusions que ZWICKER²⁸⁾ tire de la mesure par ultra-sons de haute fréquence ($3 \cdot 10^7$ cycles) des modules d'élasticité de KH_2PO_4 .

Les mesures d'absorption infra-rouge pour le sel de seignette (VALASEK²⁹⁾) indiquent des minima caractéristiques dans le domaine normal des liaisons O—H entre $1,5$ et 3μ . Ces bandes se déplacent vers le visible de $0,1 \mu$ environ par abaissement de la température au-dessous du point de Curie supérieur.

Il semble donc que le phosphate de potassium possède une liaison H anormalement faible également vis-à-vis de substances ayant

des propriétés diélectriques semblables. La diminution de cette liaison au-dessous du point de Curie accusée par 4 mesures sur 5, si elle est réelle, indique aussi un comportement inverse de celui du sel de seignette.

La chaleur de transition de KII_2PO_4 de 57,3 cal./mol (BANTLE³⁰) n'est pas conditionnée uniquement par la variation de la liaison du proton. Cette variation agit bien dans le sens d'une augmentation d'énergie interne, mais peut être compensée dans une certaine mesure par une modification de la cohésion du cristal, ce qui empêche une comparaison directe.

L'hypothèse d'harmonicité de la liaison que nous avons admise en première approximation peut se discuter. Le potentiel caractéristique d'une liaison-hydrogène présente probablement *deux minima* (non nécessairement symétriques) séparés par un dos de potentiel, ou un *minimum unique*, suivant que la distance O—O est plus ou moins grande. Dans le second cas l'oscillation a des chances d'être harmonique à faible amplitude. Dans le premier, cela est moins plausible et dépend de la hauteur de la barrière de potentiel séparant les positions d'équilibre. La distance critique entre les deux cas serait de 2,592 Å (HUGGINS³¹). Dans le cas de l'eau, la distance O—O est de 0,16 Å supérieure mais, par suite de la dyssymétrie probable et de la barrière importante, un seul des deux minima fournit une position stable et il est raisonnable d'admettre une oscillation harmonique. Dans le cas de KH_2PO_4 , la distance O—O est à température normale de 0,4 Å inférieure à la valeur critique, ce qui signifie minimum unique et est également plutôt favorable à l'hypothèse d'harmonicité.

D'après UBBELHODE et WOODWARD³²), se serait le passage, sous l'influence de la dilatation thermique, du type de liaison à minimum unique (sans caractère polaire) au type asymétrique à double minimum (polaire) qui expliquerait la transition pour le point de Curie inférieur du sel de seignette. Cette explication que les auteurs semblent proposer aussi pour KII_2PO_4 n'est guère admissible dans ce cas où c'est le phénomène inverse qui se produit (disparition de la polarisation par augmentation de température).

On voit qu'une discussion plus détaillée des résultats obtenus (en particulier des valeurs de f) n'est pas possible avant qu'un schéma théorique plus précis de la liaison ne soit proposé et que l'on dispose de renseignements exacts sur la déformation des groupes PO_4 dans la transition. Des mesures par rayons X à ce sujet sont en cours dans cet institut.

VII. Conclusions.

Des résultats de ce travail nous pensons pouvoir tirer les conclusions suivantes:

1° La méthode d'étude des champs moléculaires par diffusion des neutrons lents repose sur des effets nettement mesurables pour les liaisons où interviennent des atomes légers et fournit des indications qualitatives et dans certains cas quantitatives sur les transitions caractéristiques des substances étudiées.

L'exactitude du procédé est encore limitée par les erreurs d'ordre statistique et certaines hypothèses difficilement contrôlables nécessaires à la discussion quantitative des mesures.

On peut entrevoir un champ d'application possible en chimie organique, en premier lieu pour les composés hydrogénés simples.

2° La méthode, limitée à la seule mesure de la section totale de diffusion est naturellement imparfaite, mais est susceptible de grandes améliorations fondées sur les points suivants:

a) L'emploi de neutrons monoénergétiques ce qui élimine l'imprécision considérable inhérente à l'introduction d'une énergie moyenne.

b) Une source intense de neutrons (condition actuellement réalisée par exemple par les piles d'uranium),
rendant possible

c) une collimation poussée;

d) la mesure de la distribution angulaire de la diffusion. (Comme on peut le voir par exemple à partir des expressions précédant les formules (6) et (12) le coefficient de la grandeur caractéristique des liaisons ε , dépend fortement de l'angle de diffusion. Il est possible par conséquent de choisir des directions de grande sensibilité c'est-à-dire pour lesquelles ce coefficient est grand);

e) enfin une statistique améliorée.

En terminant, je me fais un devoir d'exprimer mes vifs remerciements à M. le professeur P. SCHERRER pour l'intérêt qu'il a porté à ces recherches et l'aide matérielle qu'il m'a procurée.

Zurich, Institut de physique E.P.F.

Bibliographie.

1) BEYER, H. G. et WHITTAKER, M. D., Phys. Rev. **57**, 976 (1940).

2) RASETTI, F., Phys. Rev. **58**, 321 (1940).

3) NIX, F. C., BEYER, H. G. et DUNNING, J. R., Phys. Rev. **58**, 1031 (1940).

4) NIX, F. C. et CLÉMENT, G. F., Phys. Rev. **68**, 159 (1945).

5) CARROL, H., Phys. Rev. **60**, 702 (1941).

- ⁶⁾ PAULING, L., Phys. Rev. **36**, 430 (1930).
- ⁷⁾ FOWLER, R. H., Proc. Roy. Soc. **149**, 1 (1935).
- ⁸⁾ GIBERT, A., KELLER, R., et ROSSEL, J., Helv. Phys. Acta **19**, 493 (1946).
- ⁹⁾ FERMI, E., Ric. Scient. **7**, 13 (1936).
- ¹⁰⁾ BETHE, H. A., Rev. of Mod. Phys. **9**, 124 (1937).
- ¹¹⁾ ARLEY, N., Medd. Danske Vid. Selskab **16**, 1 (1938).
- ¹²⁾ SCHWINGER, J. et TELLER, E., Phys. Rev. **52**, 286 (1937).
- ¹³⁾ HAMERMESH, M. et SCHWINGER, J., Phys. Rev. **69**, 145 (1946).
- ¹⁴⁾ SACHS, R. G. et TELLER, E., Phys. Rev. **60**, 18 (1941).
- ¹⁵⁾ WICK, G. C., Phys. ZS. **38**, 403 et 689 (1937).
- ¹⁶⁾ WEINSTOCK, R., Phys. Rev. **65**, 1 (1944).
- ¹⁷⁾ SEEGER, R. J. et TELLER, E., Phys. Rev. **62**, 37 (1942).
- ¹⁸⁾ WEST, J., ZS. f. Krist. **74**, 306 (1930).
- ¹⁹⁾ SLATER, J. C., J. Chem. Phys. **9**, 16 (1941).
- ²⁰⁾ DENNISON, D. M., Astrophys. Journ. **62**, 84 (1925).
- ²¹⁾ KOHLRAUSH, K. W. F., Der Smekal-Raman-Effekt Ergänz.-Bd. p. 146 (1938).
- ²²⁾ GIBERT, A. et ROSSEL, J., Helv. Phys. Acta **19**, 285 (1946).
- ²³⁾ LAPOINTE, C. et RASETTI, F., Phys. Rev. **58**, 554 (1940).
- ²⁴⁾ PAULING, L., J. Am. Chem. Soc. **57**, 2680 (1935).
- ²⁵⁾ MASON, W. P., Phys. Rev. **69**, 173 (1946).
- ²⁶⁾ DUNNING, J. R., PEGRAM, G. B., FINK, G. A. et MITCHELL D. P., Phys. Rev. **48**, 265 (1935).
- ²⁷⁾ VOLZ, H., Z. f. Phys. **121**, 201 (1943).
- ²⁸⁾ ZWICKER, B., Helv. Phys. Acta **19**, 523 (1946).
- ²⁹⁾ VALASEK, J., Phys. Rev. **45**, 654 (1934).
- ³⁰⁾ BANTLE, W., Helv. Phys. Acta **15**, 373 (1942).
- ³¹⁾ HUGGINS, M. L., J. Phys. Chem. **40**, 723 (1936).
- ³²⁾ UBBELOHDE, A. R. et WOODWARD, I., Proc. Roy. Soc. **185**, 448 (1946).

Über die Materialisierung der γ -Strahlen im Felde eines Elektrons

von A. Borsellino, Phys. Inst. des Politecnico, Milano.

(3. X. 1946.)

Übersicht: Der Aufsatz behandelt die Wahrscheinlichkeit der Bildung von Elektronenpaaren durch Materialisierung eines Photons im Felde eines Elektrons, welcher Vorgang theoretisch von F. PERRIN studiert worden ist. Es werden die Ergebnisse der genauen Rechnung des wirksamen Querschnitts nach der DIRAC'schen Theorie, in der Approximation von BORN, angeführt, aus denen hervorgeht, dass die Wahrscheinlichkeit des Vorgangs in Übereinstimmung mit den Versuchsergebnissen nach K. ZUBER stets geringer ist, als PERRIN angenommen hatte.

Die Möglichkeit einer Materialisierung der γ -Strahlen im Felde eines Elektrons wurde zuerst von F. PERRIN¹⁾ erwogen. Dieser wies nach, dass zur Erhaltung der Energie und des Impulses die Energie des Quantums mindestens $4 mc^2$ sein muss, d. h. doppelt so hoch als das zur Materialisierung im Felde eines Kerns erforderliche Minimum. Ferner, da die Wirkung dem Quadrat der Ladung, in deren Feld jene zustandekommt, proportional ist, und da die Elektronen in der Materie Z -mal zahlreicher sind als die Kerne, hat PERRIN die Wahrscheinlichkeit des Vorgangs Z -mal kleiner geschätzt als im Falle des Kerns, wobei er annahm, dass angesichts der Strukturgleichheit des Feldes die Abhängigkeit von den anderen Faktoren (Energie des Photons) in beiden Fällen dieselbe sei.

Auf dem Versuchswege ist die Wirkung jedoch seltener festgestellt worden als nach dieser ersten Schätzung anzunehmen war. Gelegentlich konnte — einmal von M. DA SILVA²⁾ und zum anderen Mal von SHINOHARA und HATAYAMA³⁾ — eine photographische Aufnahme in der Wilsonkammer gemacht werden, die ein Elektronendrilling — ein positives und zwei negative (dasjenige des Paares und das Rückstosselektron) — zeigte; die Energien der Elektronen stimmen gut mit den Gesetzen der Erhaltung überein unter der Voraussetzung, dass es sich in den beiden Fällen um die Materialisierung der Photonen von 2,62, bzw. 6,1 MeV handle.

Immerhin wurden im Laufe der ausgedehnten statistischen Forschungen über die Materialisierung der γ -Strahlen in dem die Wilsonkammer füllenden Gas, die von SIMONS und ZUBER⁴⁾ und von ZUBER allein⁵⁾ bei Verwendung der Photonen von 2,60 MeV

des ThC'' durchgeführt wurden, auf 142 Photographien von in Argongas gebildeten Elektronenpaaren keine Drillinge festgestellt, während nach PERRIN deren ungefähr 8 zu erwarten waren.

Die direkte Errechnung des wirksamen Querschnittes des Vorgangs rechtfertigt jedoch vollkommen dieses negative Ergebnis und beweist eine effektive Überschätzung der Wahrscheinlichkeit des Vorgangs seitens PERRIN. Es ist dies die Folge der Tatsache, dass im vorliegenden Falle wegen der grossen Geschwindigkeit welche die Teilchen (auch das gestossene Elektron) annehmen müssen, die relativistischen Wirkungen der Verspätung der Potentiale und die wechselseitige Spinwirkung, die das Feld schwächen, fühlbar werden, wogegen im Falle des Kerns das Feld als streng coulombisch aufgefasst werden kann, da der Kern nach dem Stoss praktisch stillsteht.

Während hinsichtlich der Rechnungsdurchführung anderwärts⁶⁾ verwiesen wird, sei hier lediglich das Ergebnis angeführt. Bezeichnet man mit σ_K und σ_E die wirksamen Querschnitte „pro Atom“ der Materialisierungsvorgänge des Quantums von $h\nu$ Energie im Kernfeld, bzw. im Felde eines beliebigen atomischen Elektrons, so ergibt sich:

$$\sigma_K = Z^2 \cdot \frac{1}{137,3} \left(\frac{e^2}{mc^2} \right)^2 \cdot F_K(\alpha)$$

$$\sigma_E = Z \cdot \frac{1}{137,3} \left(\frac{e^2}{mc^2} \right)^2 \cdot F_E(\alpha)$$

α	4	4,4	5,2	6	10	20	50	(100)
F_K	0,32	0,35	0,67	0,89	1,94	3,75	6,4	(8,4)
F_E	0	0,0044	0,038	0,102	0,627	2,05	4,78	(7,15)

wobei $\alpha = \frac{h\nu}{mc^2}$ ist und die Zahlenwerte von $F(\alpha)$ die in der Tabelle angegebenen sind. (Die Werte der ersten Zeile sind die von HEITLER in „Quantum Theory of Radiation“, 1936, Seite 200, gegebenen.) Wie man sieht, ist das Verhältnis der beiden Wahrscheinlichkeiten stets kleiner als das von PERRIN angenommene Verhältnis $1/Z$, insbesondere für niedrige Energien. Im Falle der ZUBERSCHEN Versuche, bei welchen $\alpha = 5,2$ und $Z = 18$ ist, findet man z. B. $\sigma_E = (1/320) \sigma_K$. Bei hohen Energien nähert sich das Verhältnis F_E/F_K , wenn auch langsam, dem Grenzwerte 1 und die Wahrscheinlichkeit folglich dem von PERRIN angegebenen Wert. Es muss jedoch bemerkt werden, dass für hohe Energien die vorliegenden Ergebnisse zu gross sind und die Abhängigkeit von Z komplexer ist, da die

angegebenen Ausdrücke nur bei „engen“ Stößen (den bei niedrigen Energien einzig möglichen) mit grosser Impulsübertragung auf das gestossene Teilchen Gültigkeit haben, wobei daher im Falle des Kerns die Schirmwirkung und im Falle des Elektrons die atomische Bindung vernachlässigt wird; im letzteren Falle sind folglich die Stösse, welche bei Übertragung eines kleinen Impulses auf das Atomelektron das Atom im Erregungszustand belassen können, nicht berücksichtigt worden, welche Stösse dagegen bei hohen Energien die wahrscheinlichsten werden⁷⁾.

Die oben angeführten Ergebnisse können bei den kleinsten vorkommenden Energien als hinreichend genau betrachtet werden, da die BORNSche Approximation gültig ist. Man sieht, dass für die Photone des ThC'' keine „Absorption seitens der Masse“ (proportional zu Z), wie sie von einigen Autoren anscheinend festgestellt wurde^{8) 9)}, auch nicht für leichte Elemente, in merkbarem Ausmass erwartet werden kann, was mit den über die Materialisierung in der Wilsonkammer angeführten Messungen und mit den von anderen erzielten Ergebnissen^{10) 11)} übereinstimmt.

Literatur.

- 1) F. PERRIN, C. R. Paris **197**, 1100 (1933).
- 2) M. DA SILVA, Ann. de Phys. **11**, 504 (1939).
- 3) K. SHINOHARA und M. HATAYAMA, Phys. Rev. **59**, 461 (1941).
- 4) L. SIMONS und K. ZUBER, Proc. Roy. Soc. London **159**, 383 (1937).
- 5) K. ZUBER, H. P. A. **11**, 207 (1938); ib. **15**, 38 (1942).
- 6) Diese Arbeit, die 1943 in den Atti dell'Accademia d'Italia veröffentlicht werden sollte, ist gegenwärtig in Vorbereitung zur Veröffentlichung in „Revista de la Univ. nac. de Tucuman“. Auch an dieser Stelle spreche ich Herrn Prof. G. RACAH meinen Dank für seine wertvolle Ratschläge aus.
- 7) J. A. WHEELER und W. E. LAMB, jun., Phys. Rev. **55**, 858 (1939).
- 8) S. DE BENEDETTI, Ric. Scient. **14**, 192 (1936).
- 9) D. BOCCIARELLI, Ric. Scient. **15**, 238 (1937).
- 10) S. FRANCHETTI, Ric. Scient. **16**, 161 (1938).
- 11) L. GROSHAW, C. R. Mosca **26** (1940).

Elektronenröhren-Spektrograph zur Messung von Ionisationskammerimpulsen

von **D. Maeder** (Zürich).

(24. XII. 1946.)

§ 1. Einleitung.

Die Untersuchung der Energietönung von Kernprozessen mittels Ionisationskammer und Proportionalverstärker erfordert bei der üblichen Impulsregistrierung mit dem Schleifenoszillographen eine Grösseneinteilung und Auszählung der einzelnen Impulse. Diese zeitraubende Arbeit kann grundsätzlich durch eine geeignete Registriermethode automatisch ausgeführt werden, z. B. durch Verwendung getrennter Zählwerke, deren jedes auf einen anderen Energiebereich anspricht. Für eine derartige „Vielkanalregistrierung“ geeignete Selektor-¹⁾ oder auch Diskriminator-²⁾schaltungen sind zwar bekannt, doch scheint sich die Methode wegen des erheblichen apparativen Aufwandes bisher nicht eingeführt zu haben.

Um als Messergebnis direkt die Grössenverteilung der Impulse zu erhalten, hat der Verfasser eine kontinuierlich analysierende Registriermethode entwickelt, bei der die Impulssummation pro Energieintervall photographisch erfolgt. Abgesehen vom Wegfall der Auszählarbeit bietet die kontinuierliche Zerlegung auch grundsätzliche Vorteile für die Beobachtung einer schwachen Feinstruktur, wie in § 2 angedeutet wird. Die endgültige Apparatur wurde ferner mit einer automatischen Sperrung versehen, die einander überlagernde Impulse praktisch von der Messung ausschliesst. Der Impulsspektrograph liefert in einem Arbeitsgang direkt eine Intensitäts-Energiekurve und zeichnet sich gegenüber anderen Methoden durch verhältnismässig geringen Aufwand aus.

§ 2. Die Grösse der Auszählintervalle.

Wir betrachten ein durch die Dichtefunktion

$$W(E) = \lim_{\substack{N \rightarrow \infty \\ \delta E \rightarrow 0}} \frac{1}{N} \cdot \frac{\delta n}{\delta E} \quad (1)$$

charakterisiertes Spektrum, wobei δn die dem Energieintervall E , $E + \delta E$ zugehörigen, $N = \sum \delta n$ die Gesamtzahl beobachteter Im-

pulse bedeuten. $W(E)dE$ stellt also die Wahrscheinlichkeit dafür dar, dass ein Impuls in das Intervall E , $E + dE$ fällt. Bei der Wahl endlicher Auszählintervalle ΔE wird man die entsprechenden Impulszahlen Δn den Intervallmitten zuordnen; der hierdurch begangene Fehler in E lässt sich leicht als Fehler in W ausdrücken:

$$\Delta_E W = \left(\frac{\Delta E}{2}\right)^2 \cdot \frac{W''}{3!} + \left(\frac{\Delta E}{2}\right)^4 \frac{W''''}{5!} + \dots \quad (2)$$

Einer beliebigen Verkleinerung von $\Delta_E W$ steht die mit abnehmendem ΔE wachsende statistische Schwankung von Δn im Wege. Das auf W umgerechnete mittlere Schwankungsquadrat lautet:

$$\overline{\Delta_n W^2} = \frac{\overline{\Delta n}}{\Delta E^2 \cdot N^2} \approx \frac{W}{\Delta E \cdot N}. \quad (3)$$

Aus (2) und (3) folgt bei gegebenem Spektrum und gegebener Gesamtimpulszahl N eine optimale Intervallbreite

$$\Delta E_{\text{opt}} \approx \sqrt[5]{144 \frac{W}{W''^2 N}}, \quad (4)$$

für welche das totale mittlere Fehlerquadrat $\Delta_E W^2 + \overline{\Delta_n} W^2$ einen Minimalwert annimmt. Unter Berücksichtigung des Untergrundes ΔE_u^2 der Energiemessung lautet jener:

$$\overline{\Delta W}_{\text{min}}^2 \approx \frac{5}{4} \frac{W}{\Delta E_{\text{opt}} \cdot N} + W'^2 \Delta E_u^2 \quad (5)$$

(dabei sind W'''' und höhere Ableitungen vernachlässigt).

Bei der Anwendung von (4) und (5) auf eine schwache, dem allgemeinen Verlauf des Spektrums überlagerte Feinstruktur lassen sich leicht Fälle angeben, in denen ΔE_{opt} mit dem Abstand E_m benachbarter Maxima vergleichbar, $\sqrt{\overline{\Delta W}_{\text{min}}^2}$ jedoch kleiner als die W -Amplitude wird. Hinsichtlich der Unsicherheit in W lässt sich diese Struktur auflösen: bezüglich E erhebt sich die zusätzliche Forderung, dass auf das Intervall E_m eine genügende Anzahl „Messpunkte“ verteilt sein muss.

Für die Untersuchung einer schwachen Feinstruktur ist daher die Methode der überlagerten Auszählintervalle einer Auszählung nach aneinander anschliessenden Intervallen vorzuziehen. Der kontinuierlich analysierende Impulsspektrograph erfüllt diese Forderung, vorausgesetzt, dass entweder die Unschärfe δE der Registrierung von der Grössenordnung ΔE_{opt} ist, oder dass die Ergebnisse nachträglich entsprechend verbreitert werden, falls δE merklich $< \Delta E_{\text{opt}}$.

§ 3. Grundsätzliche Arbeitsweise.

Das Eintreffen eines Eingangsimpulses löst 3 aneinander anschliessende Kippvorgänge mit den charakteristischen Zeitdauern τ_L (= Ladedauer), τ_M (= Messdauer), τ_E (= Entladedauer) aus. Die hierzu verwendeten 3 Elektronenrelais $R I$, $R II$, $R III$ (siehe

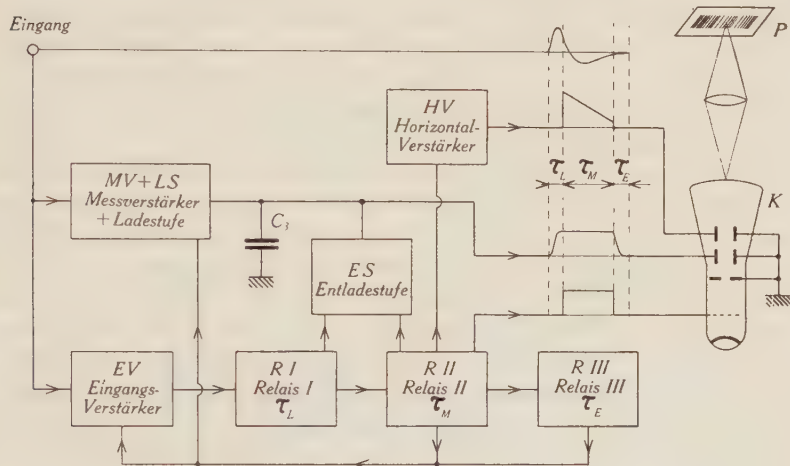


Fig. 1.

Blockschema des Impulsspektrographen.

Fig. 1) steuern zugleich die übrigen Bestandteile der Apparatur nach folgendem Programm:

1. Der Eingangsverstärker EV wird während τ_M und τ_E gesperrt. Das Ansprechen des Eingangsrelais $R I$ ist also nur vom Ruhezustand aus möglich.
2. Der Messverstärker MV mit der Ladestufe LS wird wie EV gesteuert, die Messkapazität C_3 kann daher nur während des Ruhezustandes und während τ_L aufgeladen werden.
3. Die Entladestufe ES ist im Ruhezustand und während τ_E leitend, während τ_L und τ_M gesperrt. Die Vertikalablenkung des Kathodenstrahloszillographen K bleibt somit während τ_M konstant und geht während τ_E in ihre Ruhelage zurück; anderseits werden vom Untergrund herrührende Vertikalablenkungen während des Ruhezustandes fortwährend „gelöscht“.
4. Der Horizontalverstärker HV liefert während τ_M eine einmalige sägezahnförmige Ablenkspannung.
5. Das Gitter der Kathodenstrahlröhre K wird während τ_M in der Nähe ihres Kathodenpotentials gehalten, für die übrige Zeit stark negativ gemacht.

Man wählt τ_L etwas grösser als die Anstiegsdauer der Eingangsimpulse, τ_M ungefähr gleich der Abklingdauer, und τ_E möglichst kurz. Für die Registrierung wird somit die gesamte Zeit ausgenützt, während welcher der Proportionalverstärker infolge der Abklingvorgänge verfälschte Impulse liefern würde (die seltene Überlagerung zweier Impulse innerhalb τ_L kann selbstverständlich nicht verhindert werden). Die — je nach Grösse der Eingangsimpulse in verschiedener Höhe auf dem Bildschirm von K aufblitzenden horizontalen Linien werden durch die photographische Platte P summiert, so dass die Stosszahl/Energieintervall in eine entsprechende Schwärzung übergeht (siehe § 4, d)).

Unter Verzicht auf die automatische Eingangssperrung und die unabhängige Wahl von τ_L , τ_M , τ_E wurde zunächst ein einfaches Versuchsgerät mit nur 6 Röhren gebaut, in welchem die drei Zeiten τ_L , τ_M , τ_E durch eine einzige Kippstufe erzeugt wurden*). Die Ladestufe war so ausgebildet, dass eine in weitem Bereich dem Zeitintegral der Eingangsspannung proportionale Vertikalablenkung entstand. Mittels dieser Apparatur und eines normalen Kathodenstrahloszillographen wurde die Frequenzabhängigkeit der photographischen Summation regelmässiger Impulse von etwa 1 Hz bis zu über 100 Hz untersucht und die grundsätzliche Brauchbarkeit der Methode festgestellt.

§ 4. Vollausgebauter Impulsspektrograph.

Die für die physikalische Anstalt der Universität Basel gebaute Apparatur ist mit sämtlichen in § 3 genannten Funktionen ausgestattet. Die vielfachen Verkoppelungen stellen besondere schaltungstechnische Anforderungen an die verwendeten Kippaltungen; deren Prinzipschemata werden unter b) und c) angegeben und kurz erläutert.

a) *Vertikalablenkung.* Mit Rücksicht auf die einheitliche Form der vom Proportionalverstärker des Instituts gelieferten Ausgangsimpulse wurde die Ladestufe so gestaltet, dass die Vertikalablenkung nicht vom Zeitintegral, sondern im wesentlichen vom Spitzenwert**) der Eingangsspannung abhängt. Die hierzu verwendete

*) Die dort verwendete Kippaltung besteht zur Hauptsache aus einer Pentode und einem Transformator und führt nach dem Ansprechen eine einmalige Vollschrwingung aus. τ_L ergibt sich aus einer einstellbaren Vorspannung; τ_M und τ_E entsprechen je einer Halbschrwingung, weshalb bei dem vereinfachten Gerät $\tau_E \ll \tau_M$ nicht erfüllt war.

**) Mit einem integrierenden Impulsspektrographen und entsprechend geänderter Verstärkeranlage liesse sich grundsätzlich eine wesentlich höhere Zeitauflösung als mit dem vorhandenen, ballistisch arbeitenden Verstärker erreichen.

Kathodenfolgestufe T_3 (siehe Fig. 2) wird vom Messverstärker T_1 aus mit der Spannung V_{G3} gesteuert. Die Theorie der rein kapazitiv belasteten Kathodenfolgestufe sei im folgenden kurz angedeutet:

Idealisiert man das Kennlinienfeld von T_3 durch die Beziehung

$$i_1 = \frac{V_A + g V_G}{R_i} \quad \text{für} \quad -\frac{V_A}{g} \leq V_G \leq 0 \quad (6)$$

wobei

$$V_A = V_- - V_{C3}; \quad V_G = V_{G3} - V_{C3}$$

g = Verstärkungsfaktor, R_i = Innenwiderstand

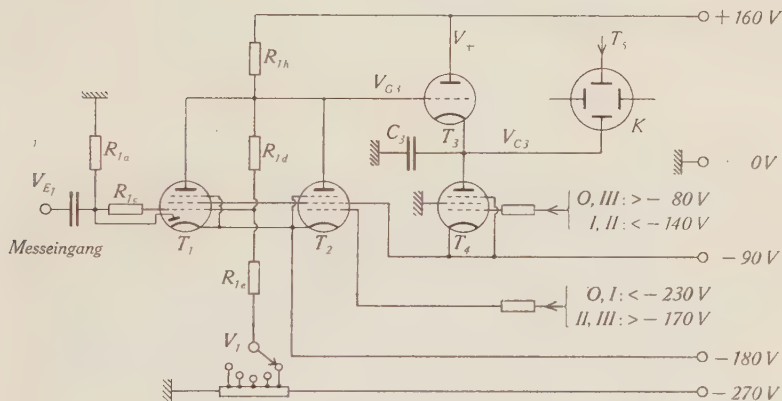


Fig. 2.

Schaltung der Vertikalablenkung.

O = Ausgangszustand, I = Ladedauer, II = Messdauer, III = Entladedauer.

so ergibt sich für Steuerimpulse von der Form

$$V_{G3} = V_0 \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_1}} \right) e^{-\frac{t}{\tau_2}} + V_{G3}^{(0)} \quad (7)$$

unter den Voraussetzungen, dass

1. während des ganzen Ladevorganges $-\frac{V_A}{g} \leq V_G \leq 0$ bleibt und

2. $(1+g) \frac{\tau_1}{\tau_i} = m \gg 1$ ($\tau_i = R_i C_3$) gilt,

ein linearer Zusammenhang zwischen der Spitzenspannung der Impulse

$$V_{G3\max} = V_0 \frac{\tau_2}{\tau_1 + \tau_2} \left(\frac{\tau_1}{\tau_1 + \tau_2} \right)^{\frac{\tau_1}{\tau_2}} + V_{G3}^{(0)} \quad (8)$$

und derjenigen der C_3 -Aufladung durch T_3 , nämlich

$$V_{C_{3\max}} = \alpha (V_{C_{3\max}} - V_{G_3}^{(0)}) \cdot \left[1 + \frac{\tau_i \beta^{m-1 - \frac{\tau_1}{\tau_2}}}{(1+g)\tau_2 - \tau_i} \right] + V_{C_3}^{(0)} \beta^m + \frac{V_+ + g V_{G_3}^{(0)}}{1+g} (1 - \beta^m), \quad (9)$$

wobei

$$\alpha = \frac{g \tau_2}{(1+g) \tau_2 - \tau_i} \left[\frac{(1+g) \tau_1 \tau_2 - \tau_i (\tau_1 + \tau_2)}{(1+g) \tau_1 \tau_2 - \tau_i \tau_1} \right]^{\frac{\tau_1}{\tau_2}}$$

$$\beta = \frac{(1+g) \tau_1 \tau_2 - \tau_i (\tau_1 + \tau_2)}{[(1+g) \tau_2 - \tau_i] (\tau_1 + \tau_2)} < 1 \quad (\tau_2 \gtrsim \tau_1).$$

Wegen $\beta^m \ll 1$ folgt aus (9)

$$V_{C_{3\max}} \approx \alpha (V_{C_{3\max}} - V_{G_3}^{(0)}) + \frac{V_+ + g V_{G_3}^{(0)}}{1+g}. \quad (10)$$

Infolge unvollkommener Erfüllung obiger Annahmen (insbesondere von (6)) entstehen bei der praktischen Ausführung gewisse Linearitätsabweichungen; um diese gegenüber den nutzbaren Ausschlägen klein zu machen, wird für Präzisionsmessungen die Verstärkung von T_1 (festgelegt und linearisiert durch R_{1c} , R_{1d} , R_{1e}) so hoch gewählt, dass zur Aussteuerung der Vertikalablenkung ein Teilausschnitt des Spektrums genügt (etwa 25%). Durch geeignete Einstellung der Vorspannung V_1 lässt sich dann jede gewünschte Stelle des Spektrums vergrößert in die Schirmmitte verschieben.

Die Sperröhre T_2 und die Entladungsröhre T_4 werden von den Elektronenrelais II und III, bzw. I und II (siehe unten) nach dem in § 3 angegebenen Programm gesteuert. Eine in Fig. 2 nicht eingezeichnete Umkehröhre T_5 zum symmetrischen Betrieb der Oszillographen-Vertikalplatten ist mit frequenzunabhängigem, wesentlich kapazitivem Spannungsteiler an- und gegengekoppelt.

b) *Eingangsrelais*. Die Reizschwelle der im Blockschema mit „Relais I“ bezeichneten Kippschaltung muss dem jeweiligen Untergrund angepasst werden können, unabhängig von der Vorspannung V_1 des Messverstärkers (siehe oben). Daher ist für die Ansprechimpulse eine separate Eingangsstufe T_0 erforderlich; um diese während τ_M , τ_E unempfindlich zu machen (analog T_1 , jedoch ohne Parallelöhre), wird ihr Bremsgitter von den Relais II und III gesteuert*).

*) Für den Ansprech-Eingang sind infolgedessen positive Impulse erforderlich; am Proportionalverstärker des Instituts sind Impulse beider Vorzeichen verfügbar.

Andererseits soll das Ansprechen so frühzeitig erfolgen, dass für die C_3 -Aufladung (siehe oben) möglichst die ganze Anstiegsdauer des Impulses zur Verfügung steht; ferner muss die Dauer τ_L des gekippten Zustandes vom weiteren zeitlichen Verlauf $V_{E_0}(t)$ des Eingangsimpulses unabhängig sein. Die in Fig. 3 (unter Weglassung einiger Einzelheiten) dargestellte Schaltung erfüllt diese Forderungen, wenn man $C_{0a} R_{0a} \gg \tau_L \gg C_7 R_{7a}$, $R_{6b} \ll R_{6a}$, $R_{7c} \ll R_{6a}$ wählt und T_0 nahe dem unteren Ende der Charakteristik arbeiten lässt. Insbesondere können sich die Abklingvorgänge von V_{E_0} über eine Zeitdauer bis zu $\tau_L + \tau_M + \tau_E$ erstrecken, ohne τ_L zu beeinflussen oder neue Kippvorgänge zu verursachen (die Wiederherstellung des geringen Ruhestromes in T_0 am Ende von τ_E mittels des kombinierten Relais II und III erfolgt soweit verlangsamt, dass Selbsterregung ausgeschlossen ist).

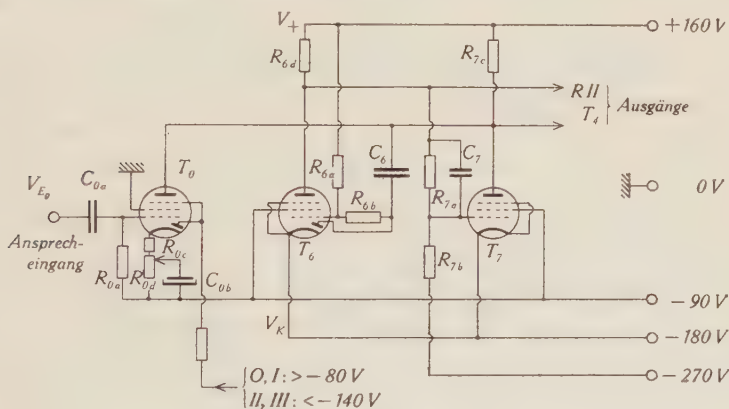


Fig. 3.

Prinzipschema des Eingangsrelais.

Die Einleitung des Kippvorganges erfordert, dass

$$\frac{dV_{E_0}}{dt} \geq \left(\frac{dV_{E_0}}{dt} \right)_{\min} \approx \frac{1}{C_6 R_{6a}} \frac{V_+ - V_k}{\mu_0} \quad (11)$$

(μ_0 = Verstärkung von T_0)

Da nun τ_L nur von $C_6 R_{6a}$ abhängt, so erkennt man, dass

$$\tau_L \cdot \left(\frac{dV_{E_0}}{dt} \right)_{\min} = V_{E_0 \min}^* \approx \frac{\text{konst}}{\mu_0};$$

dies bedeutet, dass die Apparatur jeweils kurz nach Beginn ($t = 0$) aller derjenigen Impulse anspricht, deren lineare Extrapolation für $t = \tau_L$ auf eine Spannung $V_{E_0}^* \geq V_{E_0 \min}^*$ führt, wobei $V_{E_0 \min}^*$ von der

speziellen Wahl von τ_L bzw. C_6 R_{6a} unabhängig ist. Die bei richtiger Anpassung von τ_L an die Anstiegsdauer kurz vor $t = \tau_L$ entstehende Impuls-Spitzenspannung wird zwar $< U_{E_0}^*$ bleiben, bei festgehaltener Impulsform jenem Wert aber proportional sein. Die Empfindlichkeitseinstellung mittels R_{0d} lässt sich dann direkt in Spitzenspannungen eichen, unabhängig von τ_L und ohne jeweilige Anpassung von C_{0a} R_{0a} an τ_L .

c) *Kombiniertes Relais II und III.* Im Blockscheema (Fig. 1) sind zwei voneinander unabhängige Kippschaltungen R II und R III als Steuerorgane für die Eingangssperrung, die Horizontalablenkung, die Helligkeitssteuerung und die Entladung der Messkapazität angegeben. Durch geeignete Verkopplung dieser beiden Relais lässt sich erreichen, dass während der Sperrzeiten τ_M , τ_E eintreffende

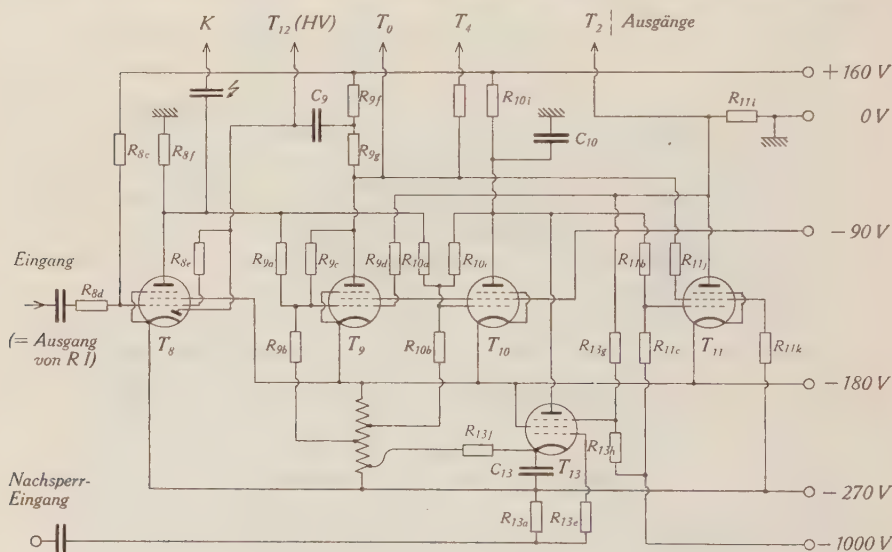


Fig. 4.
Kombiniertes Relais II + III.

Eingangsimpulse die Zeit τ_E um einen von der Impulshöhe abhängigen Betrag verlängern. Damit ist sichergestellt, dass nur solche Impulse gemessen werden, bei deren Beginn die vorangegangenen Impulse praktisch abgeklungen sind. In der nach Fig. 4 ausgeführten kombinierten Schaltung bilden T_8 und T_9 (in ähnlicher Weise wie T_6 , T_7) einen vorgespannten Multivibrator mit der Eigenzeit τ_M , nach welcher T_8 wieder in den leitenden Zustand zurückkippt. Um die von C_9 aus gesteuerte Horizontalablenkung zeitlich hin-

reichend linear zu machen, ist das Verhältnis $R_{of} : R_{og}$ so gewählt, dass $\tau_M \sim 0,1 \cdot C_9 \cdot R_{sc}$ (wobei R_{of} und $R_{sc} \ll R_{sc}$). Das Zurückkippen von T_9 vollzieht sich in zwei Teilsprüngen, die um die Zeit τ_E auseinanderliegen: nach Ablauf von $\tau_M + \tau_E$ erfolgt die Wiederherstellung des Ruhezustandes von T_9 (gesperrt) und T_{11} (leitend). Sowohl die τ_E bestimmende Aufladung von C_{10} mittels T_{10} (während τ_M) als auch der Zwischenzustand von T_9 (während τ_E) sind durch gleichstrommässige Gegenkopplungen $R_{10a, b, c}$ bzw. $R_{9a, b, c, d}$ stabilisiert. Die Abnahme der Steuerspannungen für die eingangs erwähnten Vorgänge ist im Schema durch Hinweise auf die betreffenden Röhren angedeutet (T_{12} – Verstärker für die Horizontalablenkung).

Durch zusätzliche Aufladung von C_{10} kann τ_E verlängert werden. Die Eingangsrohre T_{13} für diese Sperrzeitverlängerung wird mittels ihres durch T_{11} gesteuerten Bremsgitters nur während der Zeiten $\tau_M + \tau_E$ auf Eingangsimpulse empfindlich gemacht. R_{13f} und C_{13} sind so gewählt ($C_{13} \approx 10 C_{10}$), dass die C_{10} -Aufladung durch T_{13} annähernd proportional der Spitzenhöhe des Eingangsimpulses wird.

d) *Optischer Teil.* Die Oszillographenröhre von 9 cm Schirmdurchmesser, eine Spezialoptik von der Lichtstärke 1:1,3*) und eine Führung für Plattenkassetten sind mit dem übrigen Teil der Apparatur zusammengebaut. Eine quer zum Spektrum verschiebbare streifenförmige Blende ermöglicht die Unterscheidung zwischen dem untersuchten Spektrum und den jeweils auf die gleiche Platte aufgenommenen Eichimpulsen. Aus so erhaltenen Aufnahmen lässt sich der zu einem Intensitätsextremum gehörige Energiewert direkt ablesen.

Die Auswertung der Aufnahmen zum quantitativen Intensitätsvergleich geschieht grundsätzlich nach den bekannten Methoden der photographischen Spektralphotometrie³⁾, deren Anwendung wesentlich erleichtert wird durch die Tatsache, dass im vorliegenden Falle das gesamte „Spektrum“ durch Licht einheitlicher Zusammensetzung registriert wird. Ein vor dem Oszillographenschirm befestigtes Stufenfilter bewirkt, dass das auf der photographischen Platte entstehende Spektrum in mehrere Längsstreifen geteilt ist, die sich durch Intensitätsschwächungen voneinander unterscheiden. Aus Schwärzungsmessungen lassen sich dann die gesuchten Intensitätsverhältnisse in bekannter Weise graphisch interpolieren. Dabei

*) Die hohe Lichtstärke ermöglicht die Verwendung einer wenig empfindlichen, dafür aber sehr steil arbeitenden photographischen Platte (siehe unten). Eine Beschreibung des Objektivs erscheint demnächst an anderer Stelle.

ist aber zu beachten, dass quer zum Spektrum die Intensität (infolge des Stufenfilters), längs des Spektrums jedoch die totale Belichtungsdauer (infolge der verschiedenen Impulszahlen) variiert. Wie JONES in einem zusammenfassenden Artikel⁴⁾ feststellt, lassen sich weder die Abweichungen vom photographischen Reziprozitätsgesetz, noch die Auswirkungen der Intermittenzeffekte in allgemeingültiger Form explizit darstellen. Innerhalb des hier benützten, relativ engen Intensitätsbereiches kann man jedoch mit einem dem SCHWARZSCHILD'schen⁵⁾ analogen Ansatz

$$\text{Schwärzung } S = S(F \cdot n^q) \text{ für } \tau_M = \text{konst.} \quad (12)$$

(F = Filterdurchlässigkeit, n = Anzahl der Belichtungen,
 τ_M = Messdauer pro Impuls)

auskommen, in welchem q ausser den obgenannten Effekten auch die Nachleucht- und Ermüdungseigenschaften des Oszillographenschirms angenähert berücksichtigt. q wird aus Intensitätseichungen mit verschiedenen Impulszahlen n bestimmt und hängt wenig von F , etwas stärker von der Impulsfrequenz ab (siehe § 5). Für genaue Intensitätsmessungen müssen daher die Frequenzen der Eichimpulse den betreffenden Impulszahlen proportional gewählt werden (gleiche Betriebsdauer für jede Intensitätsstufe).

Ersetzt man das Stufenfilter durch ein kontinuierliches, exponentiell verlaufendes Keilfilter $\left(F = e^{-\frac{x}{d}}\right)$, so sind die Kurven konstanter Schwärzung von der Form

$$\log n = \frac{x}{qd} + \text{konst.} \quad (13)$$

Bei Verwendung von Platten mit extrem steiler Gradation erhält man daher ein scharf begrenztes geschwärztes Gebiet, dessen Umrandung unmittelbar die gesuchte Intensitätskurve (1) aus § 2 darstellt. Die Energieskala ist nach (10) praktisch linear, die Intensitätsskala gemäss (13) annähernd logarithmisch ($q \approx \text{konst.}$).

§ 5. Eichung und vorläufige Ergebnisse.

Die Linearität des Energiemaßstabes, d. h. die Proportionalität zwischen Impulsamplitude und Vertikalablenkung wurde sowohl mit dem BALDINGER'schen Testgerät⁶⁾, als auch mit der aus Ionisationskammer, Proportionalverstärker und speziellem Eichgerät⁷⁾ bestehenden Gesamtanordnung geprüft, wobei sich, abgesehen von einer Nullpunktskorrektur, maximale Linearitätsabweichungen von 2% ergaben. Eine allfällige Linienverbreiterung bei Variation der

Frequenz von Impulsen konstanter Amplitude war zwischen 0,6 und 15 Hz nicht nachweisbar. Dies wurde durch Aufnahme von statistisch aufeinanderfolgenden Impulsen bestätigt: die Halbwertsbreite des Intensitätsmaximums von Po- α -Teilchen (5,40 MeV⁸) ergab sich zu 0,13 MeV, also von der Grössenordnung des Untergrundes.

Die Intensitätseichung hängt wesentlich von dem in § 4 erwähnten Keilfilter ab. Mangels geeigneter käuflicher Filter wurde ein absorbierender Flüssigkeitskeil auf einen photographischen Film kopiert, wobei ein auf gleiche Weise hergestellter Korrekturkeil zur

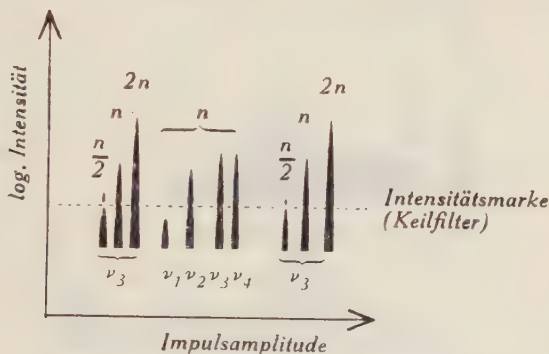


Fig. 5.

Eichaufnahme mit 10 verschiedenen Impulsamplituden von verschiedenen Impulszahlen und -frequenzen.

Linearisierung des Schwärzungsanstieges diente. Aus einer Serie derartigen, mit verschiedenen Belichtungszeiten erhaltenen Filter wurde eines mit einigermaßen linearem Schwärzungsanstieg von $s = 0,2$ (bei $x = 0$ mm) auf $s = 2,1$ (bei $x = 35$ mm) ausgesucht*) und vor dem Oszillographenschirm des Impulsspektrographen befestigt. Der relative Intensitätsbereich des Impulsspektrographen betrug somit $\text{num log } 1,9 = 80:1$.

Fig. 5 zeigt den Einfluss stark variabler Impulsfrequenz auf die photographische Impulszahlmessung. Die mit $\nu_1, \nu_2, \nu_3, \nu_4$ bezeichneten Linien wurden durch je n Impulse von den Frequenzen 0,3; 2,3; 8,5; 30 Hz erzeugt. Zum Vergleich sind auf die gleiche Platte noch 2 Gruppen von je $\frac{n}{2}, n, 2n$ Impulsen bei der konstanten Frequenz $\nu_3 = 8,5$ Hz aufgenommen. Die relativ geringe Abhängigkeit der Schwärzung von ν wird durch den Ansatz (12) brauchbar wieder-

*) Herrn Prof. Dr. F. BÜRKI vom Photogr. Institut der Universität Basel danke ich herzlich für die Benützung seines Densographen.

gegeben, wenn man Impulszahlen und Schwärzungen auf gleiche Betriebsdauern umrechnet (siehe § 4, d)). Im benützten Frequenzbereich ergibt sich $q \approx 1,1$.

Die Gleichmässigkeit des benützten Keilfilters und des Oszillographenschirms wurde durch Aufnahmen mit gleichmässiger, konti-

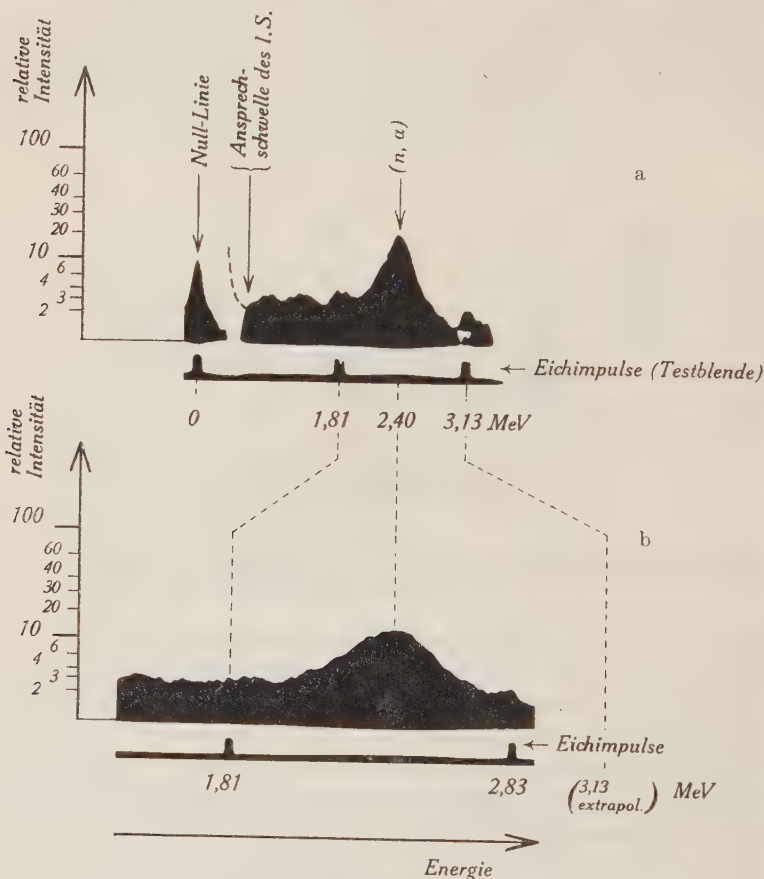


Fig. 6a und 6b.

Stickstoffreaktionen mit schnellen Neutronen.

a) Gesamtspektrum;

b) elektrisch vergrößerter Ausschnitt.

nuierlicher Schirmausleuchtung geprüft, wobei sich gewisse Korrekturen ergaben. Bei Benützung der eigens hierzu gebauten Entwicklungsmaschine und genauer Einhaltung aller die Entwicklung beeinflussenden Bedingungen können selbst die auf *verschiedenen*

Platten (der gleichen Fabrikserie) registrierten Intensitäten auf 10...20% genau miteinander verglichen werden. Auf Einzelheiten des Entwicklungs- und Kopierprozesses soll in einer ausführlicheren Arbeit eingegangen werden.

Zur weiteren Prüfung wurden die bekannten Stickstoffreaktionen⁹⁾ mit der neuen Apparatur aufgenommen. Fig. 6a zeigt das mit schnellen Neutronen (2.9 MeV) entstehende Gesamtspektrum der (n, α) -Reaktion. Fig. 6b einen nach § 4, a) elektrisch vergrösserten Teilausschnitt davon. Die Gesamtzahl registrierter Stösse be-

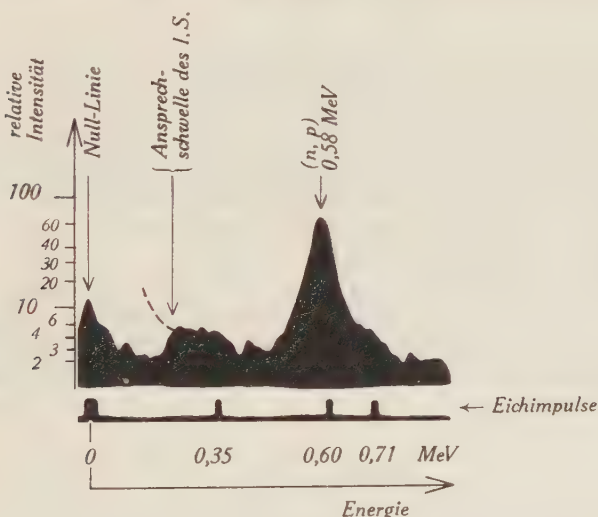


Fig. 7.

Stickstoffreaktionen mit langsamen Neutronen.

trägt für diese beiden Aufnahmen 6000 bzw. 12000. Die Anzahl Eichimpulse war bei der Aufnahme Fig. 6a zu gross gewählt, so dass diese auch im Spektrum deutlich hervortreten; in Fig. 6b ist diese Überlagerung viel schwächer. Das mit langsamen Neutronen erhaltene Gesamtspektrum der (n, p) -Reaktion ist in Fig. 7 wiedergegeben, in welcher 2400 Impulse registriert sind. Die Umrandungen der geschwärzten Gebiete stimmen innerhalb der statistischen Schwankungen und der Fehler des Keilfilters mit den durch Auszählen gefundenen Verteilungskurven⁹⁾ überein. Insbesondere lässt sich die Lage der Maxima gut reproduzieren, wobei die früher gemessenen Energietönungen der Stickstoffreaktionen bestätigt werden.

Eine genauere Beschreibung der Aufnahme, Eichung und Auswertung derartiger Spektrogramme erscheint in einer späteren

Arbeit im Zusammenhang mit den Anwendungen des Impulsspektrographen.

Herrn Prof. Dr. P. HUBER und seinen Mitarbeitern danke ich für die bereitwillige Aufnahme und Förderung des Projektes. Insbesondere bin ich Herrn Dr. E. BALDINGER für die freundliche Überlassung seines Eichimpulsgenerators und Herrn A. STEBLER für die Mithilfe bei der Neuaufnahme der N-Reaktionen zu Dank verpflichtet. Der Kommission zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung danke ich für die Gewährung finanzieller Unterstützung.

Literaturverzeichnis.

- ¹⁾ ROBERTS, Rev. Sci. Inst. **11**, 44 (1940).
- ²⁾ LEWIS, Electrical counting, Cambridge University Press 1942.
- ³⁾ Z. B. Handbuch d. Physik **19**, Kap. XXIII, Springer, Berlin 1928.
- ⁴⁾ In FORSYTHE, Measurement of Radiant Energy, Kap. VIII. McGraw-Hill Book Comp., New York 1937.
- ⁵⁾ SCHWARZSCHILD, Astrophys. Journ. **11**, 89 (1900).
- ⁶⁾ BALDINGER, H.P.A. **19**, 202 (1946).
- ⁷⁾ BALDINGER, HÄELG, HUBER und STEBLER, H.P.A. **19**, 423 (1946).
- ⁸⁾ MATTAUCH-FLUEGGE, Kernphysikalische Tabellen, Springer, Berlin 1942.
- ⁹⁾ BALDINGER und HUBER, H.P.A. **12**, 281; 330 (1939); HUBER, HUBER und SCHERRER, H.P.A. **13**, 209 (1940); H.P.A. **13**, 212 (1940); HUBER, H.P.A. **14**, 163 (1941).

Die metastabilen Zustände der Silberkerne Ag^{107} und Ag^{109}

von H. Bradt, P. C. Gugelot, O. Huber, H. Medicus,
P. Preiswerk, P. Scherrer und R. Steffen.

(11. XI. 1946.)

Zusammenfassung: Es werden die beiden Silberisomere Ag^{*107} und Ag^{*109} die als Folgeprodukt des 6,7 h- Cd^{107} und des 330 d- Cd^{109} entstehen näher untersucht.

Die *Wahrscheinlichkeit der Konversion* der von den beiden Isomeren beim Übergang in den Grundzustand emittierten Gammastrahlung in den verschiedenen Elektronenschalen wird bestimmt.

Für die $(93,9 \pm 0,2)$ keV-Gammastrahlung des als Folgeprodukt des 6,7 h-Cd auftretenden Ag_I^* der Halbwertszeit $(44,3 \pm 0,2)$ sec wurden die folgenden relativen Konversionswahrscheinlichkeiten gefunden:

$$\frac{\alpha_K}{\alpha_L} = 0,92 \pm 0,06 \qquad \frac{\alpha_K}{\alpha_M + \alpha_N} = 6,0 \pm 1,0.$$

Für die $(89,0 \pm 0,5)$ keV-Gammastrahlung des als Folgeprodukt des 330 d-Cd auftretenden Ag_{II}^* der Halbwertszeit $(39,2 \pm 0,2)$ sec ergeben sich die nur wenig verschiedenen Werte:

$$\frac{\alpha_K}{\alpha_L} = 1,01 \pm 0,06 \qquad \frac{\alpha_K}{\alpha_M + \alpha_N} = 6,1 \pm 1,0.$$

Die totale Konversionswahrscheinlichkeit $N_e/(N_e + N_\gamma)$ der 93,9 keV-Gammastrahlung des 44,3 sec Ag_I^* wird durch Vergleich der Intensität der unkonvertierten Gammastrahlung mit der bekannten Gammastrahlung des 6,7 h-Cd zu 0,94, die totale Konversionswahrscheinlichkeit der 89,0 KeV-Gammastrahlung des 39,2 sec Ag_{II}^* anknüpfend daran zu 0,95 bestimmt.

Die experimentellen Ergebnisse werden mit den nach HEBB und NELSON und nach DANCOFF und MORRISON für elektrische 2^4 -Polstrahlung und magnetische 2^3 -Polstrahlung berechneten Werten verglichen und diskutiert.

I. Einleitung.

Durch die (p,n) -Austauschreaktion werden bei Bestrahlung von Silber mit schnellen Protonen aus den beiden stabilen Silberisotopen Ag^{107} und Ag^{109} die beiden radioaktiven Cadmiumisotope Cd^{107} und Cd^{109} erzeugt¹⁾, welche beide durch K-Einfang in metastabile Zustände der isobaren Silberkerne übergehen. Das eine der beiden radioaktiven Cd-Isotope hat eine Halbwertszeit von 6,7 h und geht in ein Ag-Isomer der Halbwertszeit $T_{\text{Ag}_I^*} = (44,3 \pm 0,2)$ sec

*

über; das andere Cd-Isotop hat eine Halbwertszeit von etwa 300 d*) und geht in ein Ag-Isomer über, dessen Halbwertszeit nunmehr genauer zu $T_{\text{Ag}_{11}^*} = (39,2 \pm 0,2)$ sec bestimmt wurde (Fig. 1). Die Anregungsenergie des isomeren $44,3 \text{ sec Ag}_{11}^{*107,109}$ beträgt $(93,9 \pm 0,2)$ keV, die Anregungsenergie des $39,2 \text{ sec Ag}_{11}^{*107,109}$ $(89,0 \pm 0,5)$

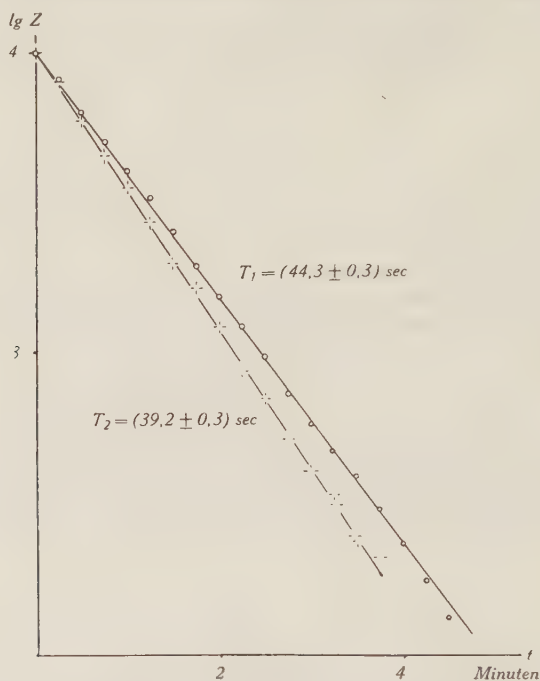


Fig. 1.

Abklingkurven der Aktivität der Ag-Isomere.

keV. (Fig. 2). Eine eindeutige Zuordnung der beiden Umwandlungsreihen zu den Massenzahlen 107 und 109 ist bis jetzt nicht möglich†).

*) HELMHOLZ²⁾ gibt für die Halbwertszeit des langlebigen Radiocadmiums den Wert (158 ± 7) d an. Wir finden als Ergebnis von Messungen der Intensität der Elektronenstrahlung, ausgeführt mit einem sehr dünnwandigen (8μ Al-Folie) Zählrohr, welche sich über etwa 1 Jahr verteilen, den erheblich grösseren Wert von 330 d. Ausser den Cadmiumaktivitäten entsteht bei Bestrahlung von reinem Silber mit schnellen Protonen überdies eine, vorläufig noch nicht definitiv zugeordnete Aktivität von ca. 40 d Halbwertszeit mit einem Positronenspektrum von 1,8 MeV Maximalenergie. Da die bei HELMHOLZ auftretende (d. 2 n)-Reaktion die gleichen Isotope gibt, wie die (p, n)-Reaktion könnte sich der zu kleine Wert von HELMHOLZ eventuell durch die Anwesenheit der 40 d Periode erklären.

†) Nachtrag bei der Korrektur. HELMHOLZ (Phys. Rev. **70**, 982, 1946) ist durch Trennung der Isotopen Cd^{166} und Cd^{168} die Zuordnung der Halbwertszeiten gelungen. Das Cd^{107} zerfällt mit einer Halbwertszeit von 6,7 h, die lange Periode gehört zu Cd^{169} . Somit ist das $44,3 \text{ sec-Ag}_I^*$ isomer zu Ag^{107} .

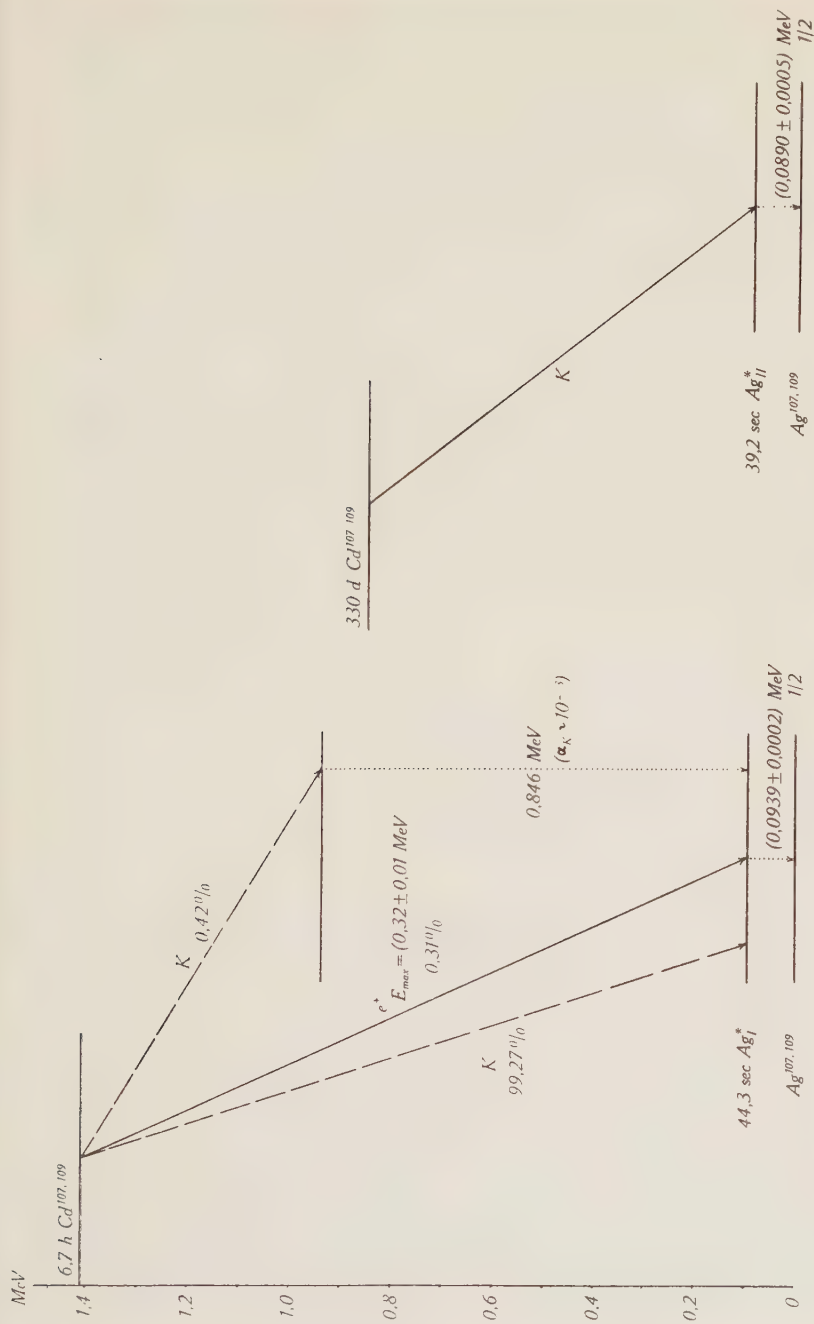


Fig. 2.

Termschemata zur Bildung der beiden Silberisomere Ag^{*107} aus dem $6,7 \text{ h-Cd}^{107}$ und Ag^{*109} aus dem 330 d-Cd^{109} .

Der Unterschied der Anregungsenergien der metastabilen Zustände der Silberisomere Ag^{107} und Ag^{109} ist von uns durch Ausmessen der Spektren der beim Übergang in den Grundzustand emittierten Konversionselektronen zu $\Delta E = 4,9$ keV bestimmt worden. Qualitativ lässt sich dieser Unterschied der Anregungsenergien durch vergleichende Absorptionsmessungen mit Blei- und Wismutabsorbern leicht demonstrieren, da die vom 44,3 sec Ag_I^* beim Übergang in den Grundzustand emittierte Gammastrahlung der Quantenenergie 93,9 keV kurzwelliger ist als die bei 90,6 keV liegende K -Kante des Wismuts; die vom 39,2 sec Ag_{II}^* beim Übergang in den Grundzustand ausgesandte Gammastrahlung der Quantenenergie 89,0 keV hingegen langwelliger. In der Tat ist die Absorption der Gammastrahlung des 44,3 sec Ag_I^* in Blei- und Wismutabsorbern bei gleicher Massendicke nahezu gleich gross, die Absorption der Gammastrahlung des 39,2 sec Ag_{II}^* dagegen in Wismut viel geringer als in Blei.

Die Strahlung des 6,7 h-Cd, welches mit 99,7% Wahrscheinlichkeit durch Einfang eines Hüllenelektrons und mit 0,3% Wahrscheinlichkeit durch Emission eines Positrons in das metastabile 44,3 sec Ag_I^* übergeht, ist früher genau untersucht worden³). Die genaue Kenntnis der Wahrscheinlichkeit der Positronenemission des 6,7 h-Cd erlaubt uns nunmehr eine Bestimmung der Konversionswahrscheinlichkeit der 93,9 keV-Gammastrahlung. Beim 330 d-Cd konnte ausser der intensiven durch den Einfang des Hüllenelektrons verursachten Ag-Röntgenstrahlung und der unkonvertierten 89,0 keV-Gammastrahlung des 39,2 sec Ag-Folgeproduktes, sowie den Konversionselektronen, keine weitere Strahlung nachgewiesen werden. Das 330 d-Cd scheint sich also ausschliesslich durch K -Einfang umzuwandeln. Positronenemission dürfte in der Tat beim 330 d-Cd überhaupt energetisch verboten sein. Die Maximalenergie des 6,7 h-Cd-Positronenspektrums beträgt nur 0,32 MeV und nach KRISHNAN und NAHUM⁴) ist die Schwellenenergie der $(d,2n)$ -Reaktion und damit auch die für die radioaktive Umwandlung zur Verfügung stehende Energie für die 330 d-Cd-Aktivität um ca. 0,5 MeV geringer als für die 6,7 h-Aktivität.

Bei systematischen Untersuchungen über Kernisomerie müssen im allgemeinen isomere Kerne verglichen werden, deren Anregungsenergien und Lebensdauern in einem weiten Bereich variieren. Es dürfte aber auch von Interesse sein voneinander wenig abweichende metastabile Kerne zu untersuchen und ein möglichst genauer Vergleich der metastabilen Zustände der beiden sich durch ein Neutronenpaar unterscheidenden stabilen Silberkerne Ag^{107} (Spin $\frac{1}{2}$, magn. Moment $\mu = -0,10 \mu_K$) und Ag^{109} (Spin $\frac{1}{2}$, $\mu = -0,19 \mu_K$) ist wünschenswert.

II. Die Konversionswahrscheinlichkeit der 93,9 keV-Gammastrahlung des 44,3 sec Ag_1^* und der 89,0 keV-Gammastrahlung des 39,2 sec Ag_{11}^* .

Die totale Konversionswahrscheinlichkeit $\alpha = N_c/(N_q + N_c)$, bzw. die Anzahl der pro Umwandlung des 44,3 sec ausgesandten 93,9 keV-Quanten $N_q/(N_q + N_c) = 1 - \alpha$ wurde experimentell bestimmt durch Messung des Intensitätsverhältnisses der 93,9 keV-Gammastrahlung und der harten Gammastrahlung des 6,7 h-Cd, deren absolute Intensität auf Grund früherer Messungen³⁾ bekannt



Fig. 3.

Absorption der Gammastrahlung des 6,7 h- Cd^{107} .

ist. Da vom 6,7 h-Cd pro Umwandlung $3,0 \cdot 10^{-3}$ Positronen ausgesandt werden, emittiert ein mit einem Absorber bedecktes 6,7 h Cd-Präparat pro Umwandlungsprozess $6,0 \cdot 10^{-3}$ Quanten der 0,51 MeV-Vernichtungsstrahlung; zur Vernichtungsstrahlung hinzu kommen pro Umwandlungsprozess $4,2 \cdot 10^{-3}$ Quanten der 846 keV-

Kerngammastrahlung, sodass die Gesamtintensität der harten Gammastrahlung $1,0 \cdot 10^{-2}$ Quanten pro Umwandlung beträgt.

Die Messungen sind mit einem Zählrohr⁵⁾ ausgeführt worden, dessen Kathode (0,1 mm Messing) inwendig elektrolytisch mit einem Goldniederschlag von 40 mg/cm² zur Vergrößerung der Ansprechwahrscheinlichkeit für die 93,9 keV- γ -Strahlung bedeckt wurde. Fig. 3 zeigt die Absorptionskurve der Gammastrahlung des im Gleichgewicht mit dem 44,3 sec Ag_1^* befindlichen 6,7 h-Cd: Die gemessene Absorptionskurve (Kurve 1) lässt sich eindeutig zerlegen in die Absorptionskurve der harten Gammastrahlung (60% Vernichtungsstrahlung und 40% Kerngammastrahlung) — Kurve 2 — und diejenige der 93,9 keV-Gammastrahlung. Das Intensitätsverhältnis der beiden Komponenten der Absorptionskurve (Verhältnis der Stosszahlen für Absorberdicke Null) ergibt sich, nach Berücksichtigung der Absorption in der Zählrohrwand und einem die Quelle bedeckenden Aluminiumfilter zu

$$Z_{0,094 \text{ MeV}} : Z_{(0,51 \text{ MeV} + 0,85 \text{ MeV})} = 13,8:1.$$

Damit berechnet sich die absolute Intensität der 93,9 keV-Gammastrahlung zu^{*)}:

$$\begin{aligned} I_{0,094 \text{ MeV}} &= \frac{N_q}{N_e + N_q} = 13,8 \cdot I_{(0,51 \text{ MeV} + 0,846 \text{ MeV})} \cdot \frac{\varepsilon_{(0,51 + 0,85)}}{\varepsilon_{0,094}} \\ &= 5,9 \cdot 10^{-2} \text{ Quanten/Umwandlung.} \end{aligned}$$

Die totale Konversionswahrscheinlichkeit bestimmt sich folglich zu

$$\alpha_1 = N_e / (N_q + N_e) = 0,94 \text{ für das } 44,3 \text{ sec } \text{Ag}_1^*$$

oder

$$\underline{N_e / N_q = 16 \pm 3.}$$

Dieser Wert für N_e / N_q ist erheblich kleiner, als der von HELMHOLTZ²⁾ durch einen Vergleich der mit der Ionisationskammer gemessenen Intensitäten von Gamma- und Röntgenstrahlung bestimmte Wert $N_e / N_q = 100$, dessen Unsicherheit von HELMHOLTZ jedoch auf einen Faktor der Grössenordnung 3 geschätzt wird.

*) ε bezeichnet die von der Quantenenergie abhängige Ansprechwahrscheinlichkeit des Zählrohrs⁵⁾. Die Sensibilität des verwendeten Zählrohrs für die harte Gammastrahlung des 6,7 h-Cd kann nicht direkt aus der in der zitierten Arbeit mitgeteilten Kurve entnommen werden ($\bar{\varepsilon} = 7,3^{+0}_{-0}$), da die Dicke des elektrolytischen Goldniederschlags (40 mg/cm²) kleiner ist, als die Reichweite der in der Kathode ausgelösten Sekundärelektronen: sie wurde durch Vergleich mit einem ZR mit dicker Bleikathode experimentell zu $\varepsilon_{(0,51 + 0,85)} = 5,0^{+0}_{-0}$ bestimmt.

Die Konversionswahrscheinlichkeit der 89,0 keV Linie des 39,2 sec Ag_{II}^* kann nicht auf die gleiche Weise ermittelt werden, da das 330 d-Cd keine härtere Gammastrahlung emittiert. Sie kann aber durch einen Vergleich der relativen Intensitäten von weicher Gammastrahlung und Ag-K-Röntgenstrahlung bei beiden radioaktiven Cd-Isotopen folgendermassen bestimmt werden: In einer Standard-Anordnung wird sowohl für ein 6,7 h-Cd-Präparat als auch für ein auf die gleiche Weise hergestelltes 330 d-Cd-Präparat die Intensität der K-Röntgenstrahlung mit einem Al-Zählrohr und die Intensität der unkonvertierten weichen Gammastrahlung mit einem Goldzählrohr registriert. Als Resultat solcher Vergleichsmessungen ergibt sich, dass pro K-Röntgenquant vom 6,7 h-Cd 1,19mal mehr 93,9 keV-Quanten ausgesandt werden als 89,0 keV-Quanten vom 330 d-Cadmium. Da die Zahl der pro Umwandlung ausgesandten K-Röntgenquanten*) für beide Isotope praktisch gleich gross ist, ergibt sich somit die Intensität der 89,0 keV-Strahlung des 39,2 sec Ag_{II}^* zu:

$$I_{0,089 \text{ MeV}} = 5,0 \cdot 10^{-2} \text{ Quanten/Umwandlung, d. h.}$$

$$\underline{N_e/N_q = 19 \pm 3 \text{ für das 39,2 sec } \text{Ag}_{\text{II}}^*}$$

und

$$\underline{\alpha_{\text{II}} = 0,95.}$$

Die Konversionswahrscheinlichkeit kann natürlich auch aus dem Verhältnis der Intensitäten von Röntgen- und Gammastrahlung bestimmt werden.

Mit dem 330 d-Cd werden in der Standard-Anordnung im Al-ZR 2050 Impulse/min der Ag-K-Strahlung registriert, entsprechend 2360 Impulsen/min für Zählrohr-Wandstärke Null. Im Goldzählrohr gleicher Dimension werden in gleicher Anordnung 324 Impulse/min der 89,0 keV-Gammastrahlung registriert, entsprechend 382 Impulsen/min für ZR-Wandstärke Null.

) Nach Rechnungen von HOURIET (persönliche Mitteilung) wären nur etwa 85% aller Einfangprozesse Einfang von Elektronen der K-Schale; die übrigen 15% wären Einfang von s-Elektronen der anderen Schalen. Für das 6,7 h-Cd im Gleichgewicht mit dem 44,3 sec Ag_I^ wäre dann die Zahl der pro Umwandlung ausgesandten K-Quanten gleich $(0,85 + 0,94 \cdot 0,43) = 1,26$ K-Quanten pro Umwandlung. (Die Lücken in der K-Schale des Ag-Atomes entstehen infolge des K-Einfangs und infolge der Konversion der 93,9 keV-Gammastrahlung.)

Als Intensität der 89,0 keV-Gammastrahlung ergibt sich daraus:

$$N_{0,089 \text{ MeV}} = 1,26 \cdot \frac{382}{2360} \frac{\varepsilon_x}{\varepsilon_q}.$$

Die Sensibilität des mit 10 cm Hg Argon plus 1 cm Alkohol gefüllten Aluminium-Zählrohrs für die *K*-Strahlung des Ag ist ε_x gleich 0,35%; die Sensibilität ε_q des Goldzählrohrs für die 89,0 keV-Strahlung beträgt 1,2%. Damit wird $N_{0,089 \text{ MeV}} = 0,06$ Quanten/Umwandlung, in guter Übereinstimmung mit dem obigen Resultat.

III. Die relativen Intensitäten der *K*, *L*- und *M*-Konversionslinien.

Nachdem so die totale Konversionswahrscheinlichkeit der Gammalinien der beiden Ag-Isomere bestimmt ist, bleibt noch das Verhältnis der Konversionswahrscheinlichkeiten für die verschiedenen Schalen der Atomhülle zu ermitteln. Für die Ausmessung der Konversionselektronen im Spektrographen wurde, um eine möglichst dünne Quelle zu erhalten, das Radiocadmium auf einem dünnen Platindraht elektrolytisch niedergeschlagen. Die Möglichkeit der elektrolytischen Abtrennung des Cd vom bestrahlten Silber wird durch den Umstand begünstigt, dass die Abscheidungspotentiale von Ag und Cd weit auseinander liegen. Nach vorhergehender chemischer Abtrennung des Silbers wurde zuerst bei niedriger Spannung das in der Lösung noch vorhandene Silber abgeschieden, und hierauf bei höherer Spannung das Radiocadmium.

Die bestrahlte Silbertarget wird in wenig heisser Salpetersäure 1:3 aufgelöst. Nun wird die Lösung mit 1 n HCl gefällt, nachdem sie zuvor durch Verdünnen auf diejenige HNO_3 -Konzentration (ca. 0,25 n) gebracht wurde, bei der das Radiocadmium in kleinster Menge am ausflockenden AgCl-Niederschlag adsorbiert wird, abgekühlt und filtriert. Das zur Trockene eingedampfte Filtrat wird mit 1 cm³ Wasser aufgenommen. Während $\frac{3}{4}$ Stunden wird das noch vorhandene Silber bei einer Badspannung von 2 V und 1 mA Stromstärke, die durch Ansäuern des Elektrolyten aufrechterhalten wird, aus der Lösung entfernt. Hierauf wird das Radiocadmium bei einer Spannung von 6 V und einer Stromstärke von 0,1 A in $1\frac{1}{2}$ Stunden auf einem 0,3 mm dicken Platindraht zur Abscheidung gebracht.

Die Ausmessung der Konversions-Elektronen im β -Spektrographen erfolgte mit einem Zählrohr, dessen Spalt mit einer Zaponlackfolie von nur 0,3 μ Dicke bedeckt war. Fig. 4a und 4b zeigen ein gegenüber einer früheren Messung¹⁾ bezüglich Streuung im

Präparat und Absorption in der Zählrohrfolie verbessertes Resultat. Die Absorption in der Zählrohrfolie ist für Elektronen von 30 keV vernachlässigbar klein. Dies wurde experimentell festgestellt durch Messungen mit verschiedenen dicken Zählrohrfolien mit den drei

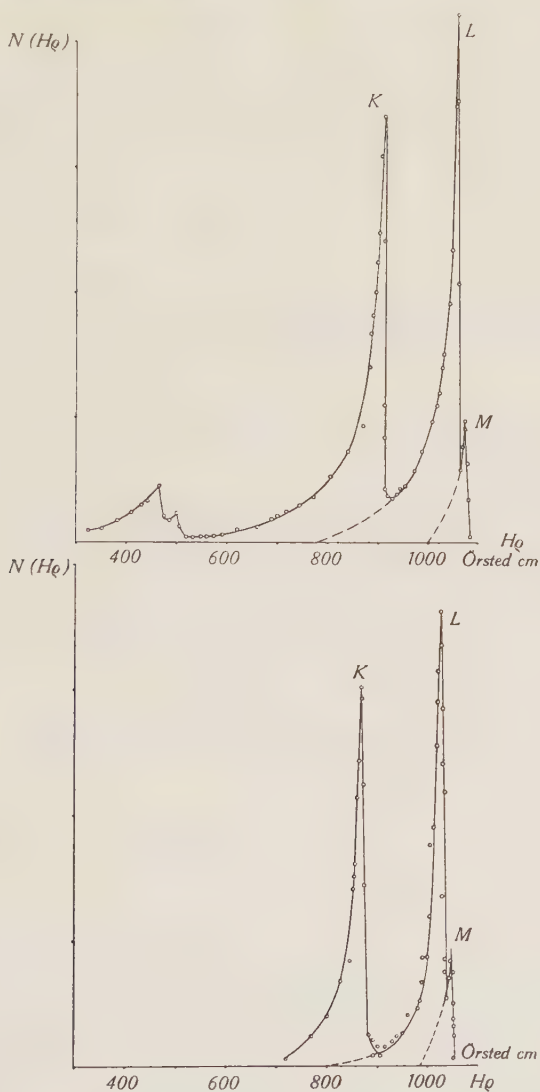


Fig. 4.

Oben: Konversionslinien der 93,9 keV-Gammastrahlung des 44,3 sec Ag_I^{*107} .

Unten: Konversionslinien der 89,0 keV-Gammastrahlung des 39,2 sec Ag_{II}^{*109} .

bei $H_Q = 458; 502$ und 537 Örsted·cm auftretenden *Augerelктronenlinien*.

Ausplanimetrierung der Konversionslinien der Fig. 4a und 4b ergibt für das Verhältnis der Intensitäten der verschiedenen Linien

$$\frac{N_K}{N_L} = 0,92 \pm 0,06 \quad \frac{N_K}{N_M + N_N} = 6,0 \pm 1,0$$

für die 93,9 keV-Gammastrahlung des $44,3 \text{ sec Ag}_I^*$. Auf die K -Schale entfallen somit 45%, auf die L -Schale 48% und auf die übrigen Schalen 7% der Konversionselektronen. Entsprechend erhält man

$$\frac{N_K}{N_L} = 1,01 \pm 0,06 \quad \frac{N_K}{N_M + N_N} = 6,1 \pm 1,0$$

für die 89,0 keV-Gammastrahlung des $39,2 \text{ sec Ag}_{II}^*$. Beim $39,2 \text{ sec Ag}_{II}^*$ entfallen also 46% auf die K -Schale, 46% auf die L -Schale und auf die übrigen Schalen 8% der Konversionselektronen.

IV. Vergleich mit theoretischen Daten.

1. Beziehung zwischen Anregungsenergie und Lebensdauer.

Die Lebensdauer eines metastabilen Zustandes ist nach den bisherigen der Theorie zugrunde gelegten Modellen lediglich eine Funktion der Anregungsenergie E und der Drehimpulsdifferenz J zwischen Anfangs- und Endzustand des Kerns. Die Vorstellung eines schwingenden Flüssigkeitstropfens führte BERTHELOT⁶⁾ zu der folgenden Beziehung zwischen Halbwertszeit und Anregungsenergie eines metastabilen Zustandes

$$T_n^q = f(n) \cdot Z^{-2} \cdot A^{\frac{5-2n}{3}} \cdot E^{-2n}$$

für elektrische 2^n -Polstrahlung

$$f(3) = 0,764 \cdot 10^{-5}, \quad f(4) = 5,25, \quad f(5) = 0,607 \cdot 10^7 \quad (E \text{ in MeV})$$

Die Berücksichtigung der Konversion⁷⁾ führt zu einer um den Faktor $\left(1 + \frac{N_e}{N_a}\right)$ verkürzten Halbwertszeit T . Die Halbwertszeit bei magnetischer 2^n -Polstrahlung ist praktisch gleich derjenigen für elektrische 2^{n+1} -Polstrahlung.

Für die Anregungsenergie der $\text{Ag}^{107, 109}$ -Isomere von ca. 90 keV führt nur der elektrische 2^4 -Polübergang bzw. der magnetische 2^3 -Polübergang auf Lebensdauern, die sich nicht um mehrere Zehnerpotenzen von den beobachteten Halbwertszeiten von 44,3 sec, bzw. 9,2 sec unterscheiden; mit $n=4$ erhält man für elektrische 2^4 -Polstrahlung eine Halbwertszeit von $T=280$ sec, während $n=3$ auf eine

Halbwertszeit von $6 \cdot 10^{-5}$ sec, $n=5$ auf eine solche von $1,2 \cdot 10^{+9}$ sec führen würde. Der für elektrische 2^4 -Polstrahlung, bzw. magnetische 2^3 -Polstrahlung berechnete Wert der Halbwertszeit stimmt grössenordnungsmässig mit den beobachteten Daten überein.

Es ist von vornherein klar, dass dieses einfache Kernmodell kein quantitativ richtiges Resultat geben kann, denn das Isomer mit der höheren Anregungsenergie hat die längere und nicht die kürzere Lebensdauer. Es muss also noch ein anderer Faktor die Halbwertszeit der beiden Ag-Isomere beeinflussen, z. B. das magnetische Moment der Kerne.

Auf Grund der obigen Anregungsenergie-Lebensdauer-Beziehung ergeben sich für beide Ag-Isomere die folgenden zwei Möglichkeiten:

- a) entweder beträgt der Spin des metastabilen Zustandes $9/2$ und beide Niveaus, der Grundzustand mit Spin $1/2$ und der metastabile Zustand, haben gleiche Parität: dann ist die ausgesandte Strahlung elektrische 2^4 -Polstrahlung;
- b) oder der Spin der Isomere ist $7/2$ und beide Zustände haben gleiche Parität: dann ist die elektrische 2^3 -Polstrahlung verboten, wir haben magnetische 2^3 -Polstrahlung plus elektrische 2^4 -Polstrahlung im allgemeinen von vergleichbarer Intensität.

Ungleiche Parität würde im ersten Fall auf eine viel zu lange Lebensdauer, im zweiten Falle auf eine viel zu kurze führen.

2. Konversionswahrscheinlichkeit der Linien.

Nach den Formeln von DANCOFF und MORRISON⁸⁾ und von HIEBB und NELSON⁹⁾ berechnet man für die Konversion der 93,9 keV und 89,0 keV-Gammastrahlung der $\text{Ag}^{107, 109}$ Isomere die folgenden Werte:

$$\begin{aligned} \text{Elektrische } 2^4\text{-Polstrahlung: } (N_e/N_q)_{K\text{-Schale}} &= 55 \\ (N_e/N_q)_{L\text{-Schale}} &= 95 \\ (N_e/N_q)_{M, N, \dots} &= 15 \end{aligned}$$

zusammen also:

$$\underline{(N_e/N_q)_{K, L, M, \dots} = 165.}$$

$$\begin{aligned} \text{Magnetische } 2^3\text{-Polstrahlung: } (N_e/N_q)_K &= 18 \\ (N_e/N_q)_L &= 4,3 \end{aligned}$$

zusammen also ca.

$$\underline{(N_e/N_q)_{K, L, M, \dots} = 24.}$$

Diese Formeln stellen nur dann eine gute Näherung dar, wenn der BORNsche Parameter Ze^2/hv klein gegen Eins ist, was beim

Fall der Ag-Isomere ($Z = 47$, $E = 90$ keV) nicht mehr zutrifft. Die gemessenen Werte $N_e/N_q = 16$ für das 44,3 sec Ag_I^* , bzw. $N_e/N_q = 19$ für das 39,2 sec Ag_{II}^* stimmen grössenordnungsmässig eher mit den nach der obigen Näherung für magnetische 2^3 -Polstrahlung berechneten Werten überein.

3. Verhältnis der Intensitäten von K- und L-Konversionslinien.

Nach HEBB und NELSON wird das Verhältnis der Konversions-elektronen aus der K- und L-Schale:

für elektrische 2^4 -Polstrahlung: $N_K/N_L = 0,58$

für magnetische 2^3 -Polstrahlung: $N_K/N_L = 4,2$.

Die gemessenen Werte $N_K/N_L = 0,92$ für das 44,3 sec Ag_I^* , bzw. $N_K/N_L = 1,01$ für das 39,2 sec Ag_{II}^* liegen dazwischen und weisen auf eine Mischung von elektrischer 2^4 -Polstrahlung mit magnetischer 2^3 -Polstrahlung hin.

Tabelle 1.

Konversion der Gammastrahlung der $\text{Ag}^{107,109}$ -Isomere.

Isomer	Ag_I^*	Ag_{II}^*
Halbwertszeit	$44,3 \pm 0,2$ sec	$39,2 \pm 0,2$ sec
Anregungsenergie . .	$93,9 \pm 0,2$ keV	$89,0 \pm 0,5$ keV
N_e/N_q exp.	16 ± 3	19 ± 3
N_K/N_L exp.	$0,92 \pm 0,06$	$1,01 \pm 0,06$
$N_K/N_M + N_N$ exp. . .	$6,0 \pm 1,0$	$6,1 \pm 1,0$
N_e/N_q theoretisch für elektr. 2^4 -Pol . .	165	165
N_e/N_q theoretisch für magn. 2^3 -Pol . .	24	24
N_K/N_L theoretisch für elektr. 2^4 -Pol . .	0,58	0,58
N_K/N_L theoretisch für magn. 2^3 -Pol . .	4,2	4,2

Auf Grund der vorliegenden Untersuchungen der Ag-Isomere (vgl. die Zusammenstellung der Resultate in Tabelle 1) scheint es daher wahrscheinlich, dass der Spin der beiden Isomere $7/2$ beträgt und beide Zustände, sowohl der metastabile als auch der Grund-

zustand der $\text{Ag}^{107, 109}$ -Isotope mit Spin $\frac{1}{2}$ die gleiche Parität besitzen. Eine genauere Auswertung der vorliegenden experimentellen Resultate würde eine verbesserte Theorie der Konversion von Gammastrahlung kleiner Energie für Kerne mittlerer Kernladungszahlen verlangen.

Literatur.

- ¹⁾ H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER, *Helv. Phys. Acta* **18**, 256 (1945).
 - ²⁾ A. C. HELMHOLZ, *Phys. Rev.* **60**, 160 (1941).
 - ³⁾ H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER, *Helv. Phys. Acta* **18**, 352 (1945).
 - ⁴⁾ R. S. KRISHNAN, E. A. NAHUM, *Proc. Camb. Phil. Soc.* **36**, 490 (1940); **37**, 422, (1941).
 - ⁵⁾ H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER, *Helv. Phys. Acta* **19**, 77 (1946).
 - ⁶⁾ A. BERTHELOT, *Cah. de Physique* **19**, 117 (1944).
 - ⁷⁾ M. H. HEBB, G. E. UHLENBECK, *Physica* **5**, 605 (1935).
 - ⁸⁾ S. M. DANCOFF, P. MORRISON, *Phys. Rev.* **55**, 122 (1939).
 - ⁹⁾ M. H. HEBB und E. NELSON, *Phys. Rev.* **58**, 486 (1940).
-

Über die Adsorption von künstlich radioaktiven Cadmiumionen an Silberchlorid

von E. Jacobi.

(11. XI. 1946.)

Zusammenfassung: Es wird die Adsorption von Cd an AgCl-Niederschlägen mit Hilfe von künstlich radioaktivem Cd als Funktion der Cl-Ionen- und H-Ionen-Konzentration untersucht. Die Adsorption von Cd-Ionen an AgCl wächst mit der negativen Aufladung der Oberfläche durch Cl-Ionen, sinkt mit steigender Löslichkeit der Adsorptionsverbindung und mit der Temperatur. Bei der Fällung des AgCl in Gegenwart von Salpetersäure verschiedener Normalität überlagern sich 2 Effekte, die als Koagulation des Niederschlages durch Säurezusatz und Schwerlöslichkeit der Adsorptionsverbindung interpretiert werden. Bis zu einer Konzentration von 0,25 n Salpetersäure überwiegt der Einfluss der Koagulation, die innere Oberfläche wird kleiner, somit auch die Adsorption. Bei grösserer HNO_3 -Konzentration nimmt der Einfluss der Schwerlöslichkeit des CdCl_2 in Salpetersäure überhand: die Adsorption steigt. Wird das Ag in verdünnter salpetersaurer Lösung quantitativ gefällt, so erfolgt die minimale Adsorption bei ca. 0,25 n Säure und bei Siedetemperatur.

1. Einleitung.

Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist die Untersuchung des Verhaltens von Cd-Ionen in unwägbarer Menge beim Fällern von AgCl. Diese Untersuchungen schienen aus mehreren Gründen interessant:

In der vorangehenden Arbeit über „die metastabilen Zustände der Silberkerne Ag^{107} und Ag^{109} “ musste radioaktives Cadmium ohne Trägersubstanz in möglichst hoher Konzentration hergestellt werden. Die Problemstellung war also folgende: das von der Silber-target oberflächlich abgelöste Ag muss quantitativ ausgefällt werden, so dass das radioaktive Cd, das aus Ag durch einen (p,n) -Prozess gebildet wird, am AgCl in kleinster Menge adsorbiert wird.

Weiter war es interessant, die Untersuchungen von BECKERATH, FAJANS und HAHN über die Adsorption von ThB, ThC und ThC'' an Silberhalogeniden durch solche mit künstlich radioaktiven Isotopen zu erweitern. Cd als radioaktiver Indikator schien aus folgenden Gründen vorteilhaft:

a) Es hat für solche Untersuchungen die nicht zu kurze Halbwertszeit von 6,7^h.

b) CdCl_2 ist mit AgCl nicht isomorph, daher erfolgt seine Abscheidung unter den hier eingehaltenen Versuchsbedingungen nur durch adsorptive Anlagerung und nicht durch mischkristall-ähnlichen Einbau.

c) AgCl ist schwerlöslich, die Adsorptionsverbindung, nämlich das CdCl_2 ist leichtlöslich, dagegen schwerdissoziierbar, so dass sich die Messungen auf Gebiete von z. B. 10—90% Adsorbierbarkeit erstrecken. Wäre die Adsorptionsverbindung schwerlöslich, so wäre die Adsorption zwar grösser, würde sich aber auf einen wesentlich kleineren Bereich beschränken (z. B. 90—95%).

Adsorptionsvorgänge von Ionen in unwägbarer Menge sind darum häufig studiert worden, weil diese trotz der extremen Verdünnung (ihre Konzentration ist um viele Zehnerpotenzen zu klein, um das Löslichkeitsprodukt zu überschreiten) ein sehr definiertes chemisches Verhalten zeigen. Ausserdem gestatten sie über die Adsorption von Elektrolytionen indirekt Schlüsse zu ziehen, wobei die radioaktiven Isotopen nur als Indikatoren dienen.

Die Gesetzmässigkeiten der Adsorption hat HAHN in seinem Adsorptionssatz zusammengefasst: Ein Ion wird aus beliebig grosser Verdünnung an einem Niederschlag dann gut adsorbiert, wenn dem Niederschlag eine der Ladung des zu adsorbierenden Ions entgegengesetzte Oberflächenladung erteilt worden und die adsorbierte Verbindung im vorliegenden Lösungsmittel schwerlöslich oder schwerdissoziierbar ist. FAJANS und ERDEY-GRUZ¹⁾ haben später gezeigt, dass ausser der Oberflächenladung und der Schwerlöslichkeit bzw. Schwerdissoziierbarkeit der Adsorptionsverbindung noch die relative Ionengrösse und Ionendeformation die Adsorption beeinflussen. Findet nun eine Adsorption statt, so ist deren Betrag ausser von der Zeit noch abhängig von der relativen Menge von Niederschlag und Lösungsmittel und von der Grösse seiner inneren Oberfläche.

Die nun folgenden Versuche fanden nicht an Äquivalentkörpern¹⁾ (das sind präformierte Niederschläge, die eine konstante Oberfläche aufweisen) statt, was sicherlich zu exakteren Messergebnissen geführt hätte, sondern die Niederschläge wurden in Anwesenheit des radioaktiven Ions gefällt, wie es die Problemstellung erforderte. Bei Einhaltung der unten erwähnten Bedingungen liess sich trotzdem gute Reproduzierbarkeit erreichen.

¹⁾ FAJANS und ERDEY-GRUZ, Zs. f. phys. Ch. **158**, 97 (1931).

2. Experimenteller Teil.

Die Versuche wurden folgendermassen ausgeführt: Die mit Protonen von einer Energie von 7 MeV bestrahlte Silbertarget wird oberflächlich in Salpetersäure gelöst, die Lösung am Wasserbad zur Trockene gedampft, in Wasser aufgenommen und nochmals zur Trockene gedampft, um so die Salpetersäure vollständig zu entfernen. Das Silbernitrat mitsamt dem durch p, n -Prozess entstandenen radioaktiven Cd wird sorgfältig getrocknet und gewogen. Nun wird 1 g davon in 100 ccm dreimal destilliertem Wasser aufgenommen und die Lösung in 10 gleiche Teile geteilt.

Ein Teil wurde mit 2 g feinem Seesand geschüttelt, um zu sehen, ob das Cd in neutraler Lösung als Ion oder als Radiokolloid vorliege. Am Seesand erfolgte eine Adsorption von ca. 30%, während der gleiche Versuch in 0,005 n Salpetersäure keine wesentliche

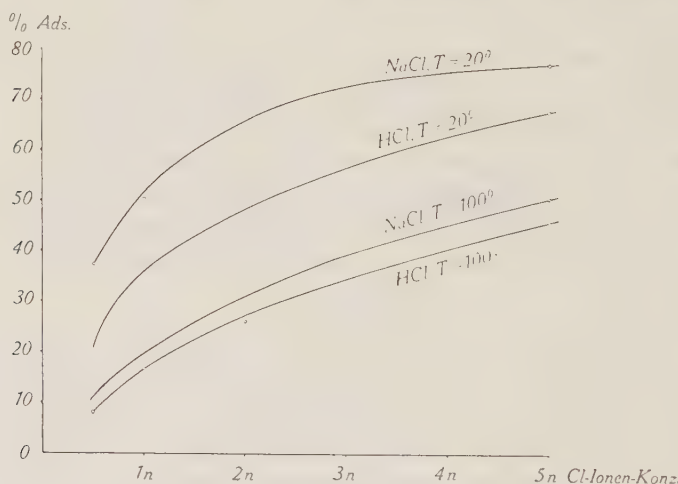


Fig. 1.

Adsorption von Cd* an AgCl in Abhängigkeit von der Cl-Ionen-Konzentration.

Adsorption ergab. Um also eine Adsorption an den Gefässwandungen zu vermeiden, wurden die folgenden Versuche stets in 0,005 n Salpetersäure ausgeführt.

Zu der unten beschriebenen Fällungslösung liess man unter Rühren aus einer Bürette die 0,005 n salpetersaure Silbernitratlösung zutropfen, ein Tropfen pro Sekunde. Nach 15 Minuten Rühren wurde der Niederschlag auf einer Nutsche abgesaugt und mit soviel heissem Wasser nachgewaschen, dass das Gesamtvolumen der Flüssigkeit nach der Fällung stets 50 ccm betrug.

Aus den Abklingungskurven des Niederschlages und des Filtrates wurde der Prozentsatz an Cd im Niederschlag bzw. im Filtrat berechnet. Die Rührzeit von 15 Minuten blieb für alle Versuche gleich, so dass die Abhängigkeit der Adsorption von der Zeit nicht berücksichtigt werden musste.

1. Es wurde die Abhängigkeit der Adsorption von der Stärke der Aufladung der Oberfläche mit Cl-Ionen untersucht. Die Fällungen wurden mit steigendem Überschuss von Cl-Ionen, die jeweils als NaCl oder als HCl zugesetzt wurden, bei Zimmer- und Siedetemperatur ausgeführt. Zu 15 ccm 0,5 n, 1 n, 2 n und 5 n HCl bzw. NaCl-Lösung wurden unter Rühren 10 ccm obiger Lösung zutropfen gelassen und durch Auswaschen des Niederschlages mit 25 ccm heissem Wasser das Endvolumen von 50 ccm hergestellt. Die Resultate dieser Untersuchungen sind in Tabelle 1 und Figur 1 zusammengestellt:

Tabelle 1.

Normalität des Fällungsmittels	% Cd im Niederschlag Fällung bei		% Cd im Filtrat Fällung bei	
	20°	100°	20°	100°
0,5 n NaCl-Lösung . .	37 ± 3	9 ± 3	62 ± 4	89 ± 4
1 n „ . .	50	20	51	79
2 n „ . .	67	28	33	73
5 n „ . .	76	50	22	50
0,5 n HCl	23 ± 3	8 ± 2	78 ± 4	92 ± 3
1 n „	37	17	63	82
2 n „	45	26	54	74
5 n „	67	46	33	56

Die oben angeführten Zahlen der adsorbierten Menge Cd in Prozenten sind Mittelwerte von mehreren Parallelversuchen.

2. Weiter wurde die Abhängigkeit der Adsorption von Cd-Ionen an AgCl von der Salpetersäurekonzentration untersucht. 10 ccm 1 n-NaCl-Lösung wurde mit je 10 ccm obiger Lösung, die vorher mit 5 ccm Salpetersäure verschiedener Konzentration auf die gewünschte Normalität gebracht war, gefällt, und zwar wiederum sowohl bei Zimmer- als auch bei Siedetemperatur. Hierauf wurde der gleiche Vorgang wiederholt mit dem Unterschied, dass jetzt die Salpetersäure erst nach der Fällung zugesetzt wurde. Das Er-

gebnis dieser Experimente ist in Tabelle 2 und Figur 2 zusammengefasst:

Tabelle 2.

Normalität der Salpeter- säure	% Cd im Niederschlag			
	Fällung bei		Salpetersäure erst nachträglich zugesetzt	
	20°	100°	Fällung bei 20°	100°
0,005 n .	62 ± 2	18 ± 2	51 ± 4	21 ± 3
0,01 n .	51	14	52	21
0,1 n .	40	11	51	22
0,25 n .	32	10	50	23
0,5 n .	35	12	50	21
1 n . .	39	15	52	21
2 n . .	50	19	50	23
4 n . .	71	23	49	21

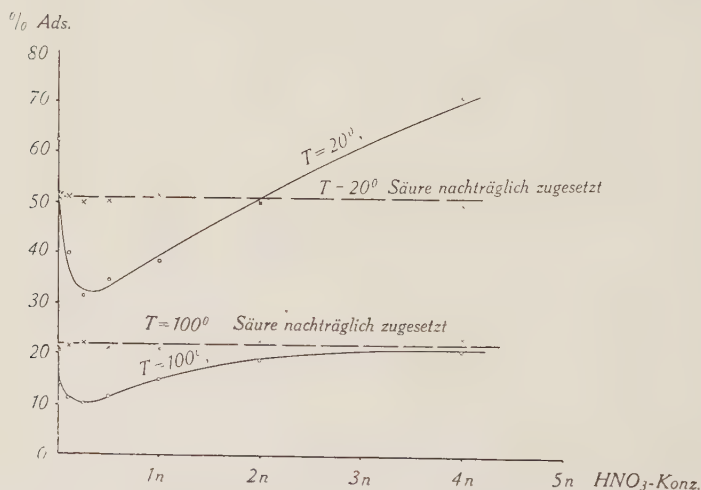


Fig. 2.

Adsorption von Cd* an AgCl in Abhängigkeit von der HNO₃-Konzentration.

3. Diskussion der Resultate.

Die Versuche zeigen, dass die Adsorption von Cd an AgCl durch adsorptive Anlagerung erfolgt und nicht durch mischkristallähnliche Einlagerung. Das geht aus der Tatsache hervor, dass durch heisse verdünnte Säure das Cd aus dem Niederschlag weitgehend gewegewaschen werden kann.

Ferner lässt sich aus dem Versuch mit Seesand schliessen, dass das radioaktive Cd bei der oben erwähnten Herstellung der Versuchslösung nicht vollständig als Ion, sondern teilweise als Radiokolloid vorliegt und dass erst durch den HNO_3 -Zusatz der kolloide Zustand zurückgedrängt wird.

Aus Tabelle und Figur 1 kann man folgendes erschen: durch steigenden Elektrolytzusatz (NaCl , HCl) nimmt die Adsorption des Cd zu, in Analogie zu den Versuchen von BECKERATH¹⁾, HAHN²⁾ und FAJANS¹⁾³⁾ mit natürlichen Radioelementen. Daraus kann man schliessen, dass die Anionen des Elektrolyten adsorbiert werden und so die Oberflächenladung des Adsorbens negativer geworden ist. Selbstverständlich werden auch die Kationen adsorbiert (allerdings nur sehr schwach, da die Adsorptionsverbindung, nämlich das KCl leichtlöslich ist), und man misst nur die Resultante der Einflüsse beider Ionen. Die Adsorptionsverbindung (das CdCl_2) ist in HCl löslich, daher ist die Adsorption bei Überschuss von H-Ionen geringer als bei gleichnormalem Na-Ionen-Überschuss, mit anderen Worten: die verdrängende Wirkung der H-Ionen ist grösser als die der Na-Ionen. Die Adsorbierbarkeit verschiedener Kationen an einem bestimmten Adsorbens kann also verglichen werden auf Grund ihrer Fähigkeit, das radioaktive Ion von der Oberfläche zu verdrängen³⁾.

Bei hoher Temperatur war die Adsorption stets geringer, was auch zum Teil darauf zurückzuführen ist, dass durch Wärme-koagulation die innere Oberfläche des Niederschlages kleiner wird.

Die ausgezogenen Kurven in Figur 2 lassen sich als Überlagerung zweier Einflüsse interpretieren: der Säurekoagulation und der Löslichkeit. Mit steigender Salpetersäure-Konzentration koaguliert der AgCl -Niederschlag, seine innere Oberfläche wird kleiner, daher auch die Adsorption von Cd-Ionen. Bei ca. 0,25 n Salpetersäure durchläuft die Kurve ein Minimum und von da an überwiegt der Einfluss der Schwerlöslichkeit der Adsorptionsverbindung in Salpetersäure: die Adsorption steigt.

Nun könnte diese steigende Adsorption nicht von der Schwerlöslichkeit des CdCl_2 in Salpetersäure herrühren, sondern von der Adsorption des Cd an Nitrationen, welche primär an das Silberchlorid angelagert werden. Dies ist aber nicht der Fall, da durch Versuche festgestellt wurde, dass das Cd-Ion an Nitronnitrat nicht adsorbiert wird!

1) FAJANS und BECKERATH, Zs. f. phys. Ch. **97**, 476 (1921).

2) HAHN und IMRE, Zs. f. phys. Ch. **144**, 161 (1929).

3) FAJANS und ERDEY-GRUZ, Zs. f. phys. Ch. **158**, 97 (1931).

Erfolgt der Säurezusatz erst nach der Fällung, so übt die Säurekoagulation auf die Adsorption keinen Einfluss mehr aus und diese bleibt konstant (gestrichelte Kurve, Fig. 2).

Herrn Prof. SCHERRER möchte ich für sein Interesse für diese Arbeit sowie den Physikern der Cyclotrongruppe für ihre Unterstützung meinen herzlichsten Dank aussprechen.

Zürich, Physikalisches Institut der ETH.

Bemerkungen zur mathematischen Theorie der Zähler

von Res Jost (Phys. Institut der ETH., Zürich).

(26. XI. 46.)

Ein allgemeines Schema zur Behandlung der Fragen, die mit dem Auflösungsvermögen von Zählordenungen verbunden sind, scheint bisher nicht publiziert worden zu sein. Es mag daher gestattet sein, einige Rechnungen, die ich vor einigen Jahren ausführte, einem grösseren Kreis zur Kenntnis zu bringen, zumal in der Literatur einige irreführende Angaben gemacht sind.

§ 1. Grundbegriffe.

Unter einem *Zähler* verstehen wir irgendeine Anordnung, die zu zählende Impulse in neue Impulse umformt. So ist z. B. ein Zählrohr und ein Zählwerk ein Zähler, aber auch eine Verstärkerstufe oder ein Untersetzer.

Die zu zählenden Impulse nennen wir die *Ereignisse*, die Impulse, die den Zähler verlassen *gezählte* oder *registrierte Ereignisse*.

Eine *Zählordnung* besteht immer aus einer Hintereinanderschaltung von mindestens zwei Zählern.

Verändert ein Zähler die zeitliche Aufeinanderfolge von Ereignissen nicht, so heisst er *ideal*.

§ 2. Der ideale Zähler.

Bei ihm haben wir zwischen gezählten Ereignissen und Ereignissen nicht zu unterscheiden.

Zur Beschreibung der Statistik der Ereignisse definieren wir die *Verteilungsfunktion für das erste Ereignis* $P(t)$: $P(t)dt$ ist die Zahl der ersten Ereignisse, die im Mittel im Zeitintervall $(t, t + dt)$ erfolgen, falls das nullte Ereignis zur Zeit $t = 0$ erfolgt.

Daraus leiten sich die Verteilungsfunktionen für das zweite, dritte, n -te Ereignis ab. Diese werden wir mit $P^{*2}(t)$, $P^{*3}(t)$, $P^{*n}(t)$

bezeichnen. Es soll $P(t) \geq 0$ und $\int_0^\infty P(t)dt = 1$ sein, dann gilt dasselbe auch für $P^{*n}(t)$.

Weiter gilt die Rekursion:

$$\int_0^t P^{*n}(t-\tau) P^{*m}(\tau) d\tau = P^{*(n+m)}(t) \quad (1)$$

Die Integralbildung links pflegt man als Faltung zu bezeichnen. Sie wird durch Laplace-Transformation in ein Produkt übergeführt:

$$p(z) = \int_0^\infty e^{-zt} P(t) dt = L\{\tilde{P}(t), z\}$$

dann ist

$$[p(z)]^n = L\{P^{*n}(t), z\}^{-1}$$

Schliesslich definieren wir die *Dichte der Ereignisse* $F(t)$: $F(t)dt$ ist die Zahl der Ereignisse, die im Mittel im Zeitintervall $(t, t+dt)$ erfolgen. Es gelten offenbar:

$$F(t) = \sum_{n=1}^\infty P^{*n}(t) \quad (2)$$

und die Integralgleichung:

$$F(t) = P(t) + \int_0^t F(t-\tau) P(\tau) d\tau \quad (3)$$

die durch Laplacetransformation in

$$f(z) = p(z) \{1 + f(z)\} \quad (3')$$

übergeht. Es sei nun

$$\int_0^\infty t \cdot P(t) dt = \bar{t} = \frac{1}{N} < \infty \quad (4)$$

Dann leuchtet ohne weiteres ein, dass

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T F(t) dt = N \quad (5)^2$$

N ist die mittlere Anzahl von Ereignissen pro Zeiteinheit und somit normalerweise die interessierende Grösse.

¹⁾ G. DOETSCH, Theorie und Anwendung der Laplacetransformation, Dover Publications, S. 155 ff. Wir werden Laplacetransformierte immer mit entsprechenden kleinen Buchstaben bezeichnen.

²⁾ FELLER, Ann. Math. Statist. **12**, 243 (1941); H. RICHTER, Math. Ann. **118**, 145 (1942).

§ 3. Der nichtideale Zähler.

Hier unterscheiden sich die Statistiken der Ereignisse $P(t)$ und der gezählten Ereignisse $\tilde{P}(t)$. Wir setzen dabei voraus, dass das nullte Ereignis auch gezählt wird. Handelt es sich z. B. um einen idealen Untersetzer, so gilt $\tilde{P}(t) = P^{*n}(t)$, und man rechnet leicht nach, dass unabhängig von der Statistik gilt: $\tilde{N} = N/n$.

Im allgemeinen werden $P(t)$ und $\tilde{P}(t)$ durch irgendeine Funktionalgleichung miteinander verbunden sein. Zwei Fälle lassen sich leicht charakterisieren, die in praxi allerdings nie rein auftreten werden:¹⁾

Zähler 1. Art: Massgebend dafür, ob ein Ereignis gezählt wird oder nicht, ist die Zeit, die seit dem letzten *gezählten Ereignis* verflossen ist.

Zähler 2. Art: Massgebend dafür, ob ein Ereignis gezählt wird oder nicht, ist die Zeit, die seit dem letzten *Ereignis* verflossen ist.

Wir definieren weiter als *Auflösungscharakteristik* $J(t)$ die Wahrscheinlichkeit, dass ein Ereignis, das zur Zeit t erfolgt, registriert wird, wobei t die Zeit ist, die seit dem letzten gezählten Ereignis resp. dem letzten Ereignis verflossen ist, je nachdem der Zähler 1. resp. 2. Art ist.

§ 4. Der Zähler 1. Art.

Es ist im allgemeinen nicht möglich, einen geschlossenen Ausdruck für $\tilde{P}(t)$ anzugeben. Durch einfache Überlegung erhält man

$$\tilde{P}(t) = J(t) \left\{ P(t) + \int_0^t K(\tau) P(\tau) P(t-\tau) d\tau + \int_0^t \int_0^{\tau_1} K(\tau_1) P(\tau_1) K(\tau_2) P(\tau_2-\tau_1) P(t-\tau_2) d\tau_1 d\tau_2 + \dots \right\}$$

wo $K(t) = 1 - J(t)$ ist.

Wir behandeln im Folgenden wichtige Spezialfälle.

a) *Fall einer bestimmten Auflösungszeit:* Dieser Fall ist definiert durch die folgende Charakteristik:

$$J(t) = \begin{cases} 0 & \text{für } 0 < t \leq \sigma \\ 1 & \text{für } t > \sigma \end{cases} \quad \sigma \text{ heisst Auflösungszeit.}$$

¹⁾ RUARK and BRAMMER, Phys. Rev. **52**, 322 (1937).

N. HOLE, Arkiv för Math. Astr. och Fys. **33 A** No. 11. (Anmerk. b. d. Korr.)

Dann wird

$$\tilde{P}(t) = J(t) \left\{ P(t) + \int_0^{\sigma} F(t) P(t-\tau) d\tau \right\} \quad (6)$$

oder auch, wie man unter Verwendung von (3) erkennt

$$\tilde{P}(t) = J(t) F(t) - \int_0^t J(\tau) F(\tau) P(t-\tau) d\tau \quad (6')$$

und

$$\tilde{F}(t) = J(t) F(t) - \int_0^t F(\tau) K(\tau) F(t-\tau) d\tau \quad (7)^1$$

woraus man nach (5) leicht findet

$$N = \tilde{N} \left(1 + \int_0^{\sigma} F(t) dt \right). \quad (8)$$

Man erkennt leicht, dass die Substitution: $P(t) \rightarrow \lambda P(t \cdot \lambda)$ für $\lambda \rightarrow \infty$ zu $\tilde{N} = 1/\sigma$ führt. Steigert man also bei „gleichartiger Betrachtung“ die „Betrahlungsintensität“ unbegrenzt, so strebt die registrierte Ereignisdichte gegen die reziproke Auflösungszeit.

Dieser Sachverhalt dient in bekannter Weise zur Bestimmung von σ .

$$b) \quad \underline{P(t) = N \cdot e^{-Nt}} \quad (9)$$

diese „Betrachtung“ entspricht dem Poisson'schen Gesetz. Es ergibt sich:

$$\tilde{P}(t) = N J(t) \cdot e^{-N \int_0^t J(\tau) d\tau} \quad (10)$$

für beliebiges $J(t)$.

Daraus lässt sich in einem konkreten Fall \tilde{N} als Funktion von N bestimmen. (10) mag auch deshalb von Interesse sein, weil sie auf einfache Weise eine Bestimmung von $J(t)$ gestattet:

$$J(t) = \tilde{P}(t) \left[N \int_t^{\infty} \tilde{P}(\tau) d\tau \right]^{-1} \quad (11)$$

¹⁾ Zwischenrechnungen, wie sie hier und im Folgenden ausgelassen sind, führt man am besten nach LAPLACE-Transformation der entsprechenden Gleichungen durch. Zum Schluss geht man wieder zur LAPLACE-Inversen über und erhält das Resultat. Die Hauptrolle spielt immer der Faltungssatz.

c) Schliesslich setzen wir in a). $P(t) = N \cdot e^{-Nt}$ ein; dann folgt nach (8):

$$N = \tilde{N}/1 - \sigma \tilde{N} \quad (12)$$

welches eine bekannte Formel ist¹⁾).

§ 5. Der Zähler 2. Art.

Hier können wir die Behandlung des allgemeinen Falles weiter treiben als in § 4. Man findet leicht:

$$\tilde{F}(t) = J(t) P(t) + \int_0^t F(\tau) P(t - \tau) J(t - \tau) d\tau \quad (13)$$

woraus nach (5) folgt:

$$\tilde{N} = N \int_0^\infty J(t) P(t) dt \quad (14)$$

Auf die Formeln für $\tilde{P}(t)$ verzichten wir, da sie von geringem Interesse sind.

Will man in ähnlicher Weise wie in § 4 das $J(t)$ bestimmen, so greift man passend auf die Formel

$$\hat{F}(t) = J(t) P(t) + \int_0^t \hat{F}(t - \tau) P(\tau) d\tau. \quad (15)$$

Doch wird die Bestimmung von $J(t)$ in praxi (z. B. bei mechanischen Zählwerken) auf andere Weise erfolgen. Spezialisieren wir auch hier auf

$$J(t) = \begin{cases} 0 & \text{für } 0 < t \leq \sigma \\ 1 & \text{für } t > \sigma \end{cases} \quad \text{und} \quad P(t) = N \cdot e^{-Nt},$$

so ergibt (14) die bekannte Beziehung

$$\tilde{N} = N \cdot e^{-N\sigma} \quad (16)^1)$$

§ 6. Zählranordnungen aus zwei Zählern.

Wir betrachten die Hintereinanderschaltung von 2 Zählern mit den Auflösungszeiten σ_1 für den ersten Zähler und $\sigma_2 \geq \sigma_1$ für den zweiten.

$$P(t) = N \cdot e^{-Nt} \rightarrow \boxed{\text{1. Zähler}}_{\sigma_1} \rightarrow \tilde{P}(t) \rightarrow \boxed{\text{2. Zähler}}_{\sigma_2} \rightarrow \tilde{\tilde{P}}(t).$$

¹⁾ RUARK and BRAMMER l. c.

Der erste Zähler sei 1. Art., dann ist nach (6')

$$\hat{P}(t) = J_1(t) N \cdot e^{-N(t-\sigma_1)} \quad \text{mit} \quad J_1(t) = \begin{cases} 0 & \text{für } 0 < t \leq \sigma_1 \\ 1 & \text{für } t > \sigma_1 \end{cases}$$

und

$$\hat{P}^{*n}(t) = J_1\left(\frac{t}{n}\right) \cdot N \cdot \frac{[N(t-n\sigma_1)]^{n-1}}{(n-1)!} \cdot e^{-N(t-n\sigma_1)}$$

womit sich $\tilde{F}(t)$ nach (2) bestimmt.

a) Der zweite Zähler sei 1. Art. Nach (8) hat man dann $\int_0^{\sigma_2} \tilde{F}(t) dt$ zu berechnen, was ergibt

$$\gamma - \sum_{n=1}^{\gamma} \sum_{v=0}^{n-1} \frac{[N(\sigma_2 - v\sigma_1)]^v}{v!} e^{-N(\sigma_2 - n\sigma_1)} \quad \text{oder} \quad \sum_{n=1}^{\gamma} \frac{\Gamma[N(\sigma_2 - n\sigma_1), n]}{\Gamma(n)}$$

wo $\gamma = \left[\frac{\sigma_2}{\sigma_1} \right]$ die grösste ganze Zahl mit der Eigenschaft $\gamma < \frac{\sigma_2}{\sigma_1}$ ist.

Damit wird schliesslich

$$\frac{1}{\tilde{N}} = \left(\frac{1}{N} + \sigma_1 \right) \left\{ 1 + \gamma - \sum_{n=1}^{\gamma} \sum_{v=0}^{n-1} \frac{[N(\sigma_2 - n\sigma_1)]^v}{v!} e^{-N(\sigma_2 - n\sigma_1)} \right\}$$

oder

$$\frac{1}{\tilde{N}} = \left(\frac{1}{N} + \sigma_1 \right) \left\{ 1 + \sum_{n=1}^{\gamma} \frac{\Gamma[N(\sigma_2 - n\sigma_1), n]}{\Gamma(n)} \right\} \quad (17)^1$$

mit $\Gamma(x, n) = \int_0^x t^{n-1} e^{-t} dt$ (unvollständige Γ -Funktion).

Man erkennt, dass die Formel für die Spezialfälle $\sigma_2 = \sigma_1$ und $N \rightarrow \infty$ das Richtige liefert.

b) Der zweite Zähler sei 2. Art. Wendet man (14) an, so kommt

$$\tilde{N} = N(1 + \sigma_1 N \cdot e^{-N(\sigma_2 - \sigma_1)})^{-1} \quad (18)$$

wobei die bekannte Paradoxie auftritt, dass die Zählordnung um so besser zählt, je schlechter das Auflösungsvermögen des ersten Zählers ist, vorausgesetzt aber, dass $\sigma_1 \leq \sigma_2$.

¹⁾ RUARK und BRAMMER l. c. leiten unter denselben Voraussetzungen Formel (18) statt (17) her. ALAOGU und SMITH übernehmen den Irrtum. Phys. Rev. **53**, 832, 1937.

7. Schwankungserscheinungen¹⁾.

In den vorhergehenden Paragraphen haben wir gesehen, wie man für eine Zählordnung die Statistik der schliesslich gezählten Ereignisse und damit die mittlere Zahl der Ereignisse pro Zeiteinheit bestimmen kann. $P(t)$, $F(t)$, N sollen sich im Folgenden auf die wirklich vom Zählwerk gezählten Ereignisse beziehen. Was uns in diesem Paragraphen interessiert, ist die Frage nach der Wahrscheinlichkeit, in einem Zeitintervall eine bestimmte Zahl von Ereignissen zu registrieren. Dabei halten wir vorläufig noch daran fest, dass das nullte Ereignis zur Zeit $t = 0$ erfolgen soll.

$W(n, t)$ sei die Wahrscheinlichkeit, im Intervall $0 < \tau \leq t$ genau n -Ereignisse zu registrieren. Offenbar ist

$$\sum_{n=0}^{M-1} W(n, t) = \int_0^t P^{*M}(\tau) d\tau$$

woraus folgt

$$W(n, t) = \int_0^t [P^{*n}(\tau) - P^{*(n+1)}(\tau)] d\tau \quad (19)$$

oder nach Laplacetransformation

$$w(n, z) = p^n(z) [1 - p(z)]/z. \quad (19')$$

Bildet man mit dieser Wahrscheinlichkeit den Erwartungswert von n , so folgt leicht

$$\sum_{n=0}^{\infty} n W(n, t) = \int_0^t F(\tau) d\tau$$

was man etwa nach (19') mit Hilfe der Reihe

$$\sum_{n=0}^{\infty} n u^n = u/(1-u)^2$$

einsieht (verwende (3')). In entsprechender Weise findet man für den Erwartungswert von n^2

$$\sum_{n=0}^{\infty} n^2 W(n, t) = \int_0^t S(\tau) d\tau \quad (20)$$

mit

$$S(t) = \sum_{n=0}^{\infty} (2n-1) P^{*n}(t) = F(t) + \int_0^t F(t-\tau) F(\tau) d\tau \quad (21)$$

$$s(z) = f(z) [1 + f(z)]. \quad (21')$$

¹⁾ VAN DER VELDEN und ENDT, Physica IX, 641 (1942); LEVERT und SCHEEN, Physica X, 225 (1943); GILTAY, Physica X, 725 (1943); KOSTEN, Physica X, 749 (1943).

Mit diesen letzten Formeln erhält man sofort das mittlere Schwan-
gungsquadrat

$$\Sigma (n - \bar{n})^2 W(n, t) = \int_0^t S(\tau) d\tau - \left[\int_0^t F(\tau) d\tau \right]^2 \quad (22)$$

Anwendungen liegen auf der Hand.

Wir wollen uns nun von der speziellen Wahl des Zeitnullpunktes befreien und definieren zu diesem Zweck die folgende Wahrscheinlichkeit:

$A(n, t)$ sei die Wahrscheinlichkeit dafür, in einem beliebigen auf der positiven Zeitaxe liegenden Intervall der Länge t genau n -Ereignisse zu finden.

Wir bestimmen zunächst eine Hilfsfunktion. $T > 0$ sei ein beliebiger Zeitpunkt. Wir fragen nach der Wahrscheinlichkeitsdichte $P_T(t)$ dafür, dass zur Zeit $T + t$ das erste Ereignis nach dem Zeitpunkt T erfolgt. Diese Wahrscheinlichkeitsdichte haben wir im wesentlichen schon in § 4a bestimmt. Dort spielte σ die Rolle von T . Nach (6') ist

$$P_T(t) = F(T + t) - \int_0^t F(T + \tau) P(t - \tau) d\tau$$

Mittelt man $P_T(t)$ über alle T , so erhält man die Wahrscheinlichkeitsdichte $\hat{P}(t)$ dafür, nach einem beliebig herausgegriffenen Zeitpunkt t Sekunden später das erste Ereignis nach diesem Zeitpunkt zu finden. Nach (5) findet man

$$\hat{P}(t) = N \left[1 - \int_0^t P(\tau) d\tau \right] \quad (23)$$

$$\hat{p}(z) = N[1 - p(z)]/z \quad (23')$$

Nun ist offenbar

$$A(o, t) = \int_t^\infty \hat{P}(\tau) d\tau \quad (24)$$

$$a(o, z) = 1/z - N(1 - p(z))/z^2 \quad (24')$$

und

$$A(n, t) = \int_0^t \hat{P}(\tau) W(n - 1, t - \tau) d\tau \quad (25)$$

und nach (19')

$$a(n, z) = N p^{n-1}(z) (1 - p(z))^2 / z^2. \quad (25')$$

Man erkennt mit (24') und (25'), dass

$$\sum_{n=0}^{\infty} a(n, z) = 1/z \quad \text{also} \quad \sum_{n=0}^{\infty} A(n, t) = 1 \text{ ist.}$$

Bilden wir mit $A(n, z)$ Erwartungswerte, so folgt:

$$M_1(t) = \Sigma n A(n, t) = Nt \quad (26)$$

$$M_2(t) = \Sigma n^2 A(n, t) = Nt + 2N \int_0^t (t - \tau) F(\tau) d\tau \quad (27)$$

wobei man (27) über (27') gewinnt:

$$m_2(z) = N[1 + 2f(z)]/z^2 = N[1 + p(z)]/z^2[1 - p(z)]. \quad (27')$$

Für das mittlere Schwankungsquadrat $\Delta^2(t) = M_2(t) - M_1^2(t)$ ergibt sich

$$\Delta^2(t) = Nt + 2N \int_0^t (t - \tau) F(\tau) d\tau - N^2 t^2 \quad (28)$$

$$\delta^2(z) = N[1 + 2f(z)]/z^2 - 2N^2/z^3. \quad (28')$$

In Fällen, wo (28') keine handliche Rücktransformation gestattet, läßt sich oft wenigstens eine asymptotische Formel für $Nt \gg 1$ erreichen: $f(z)$ habe im Nullpunkt folgende Entwicklung

$$f(z) = N/z + a + \dots \quad (29)$$

dann ist

$$\delta^2(z) = N(1 + 2a)/z^2 + \dots$$

und

$$\Delta^2(t) \sim N(1 + 2a)t. \quad (30)$$

Zur Illustration, wie man die Formeln dieses Paragraphen anzuwenden hat, leite ich als Beispiel eine Formel von L. KOSTEN ab¹⁾.

Ein Zähler zweiter Art mit der Auflösungszeit σ werde „nach dem Poisson'schen Gesetz bestrahlt“.

Nach (16) ist, mit einer kleinen Bezeichnungsänderung $N = N_0 e^{-\sigma N_0}$ und nach (13) $F(t) = N J(t)$, $f(z) = N e^{-\sigma z}/z$.

Aus (25') folgt mit (3')

$$a(n, z) = N f^{n-1}/z^2 (1 + f)^{n+1}.$$

Entwickelt man hierin nach f , so kommt

$$a(n, z) = \frac{N}{z^2} \sum_{v=0}^{\infty} \frac{(n+v)!}{n! v!} (-1)^v f^{n+v-1},$$

¹⁾ KOSTEN, l. c.

setzt man den Wert für $j(z)$ ein und geht zur Laplaceinversen, so erhält man die gewünschte Formel:

$$A(n, t) = \sum_{v=0}^{\infty} (-1)^v J \left(\frac{t}{(v+n-1)} \right) \frac{\langle N [t - (v+n-1)\sigma] \rangle^{v+n}}{v! n!}.$$

Man beachte, dass die Summe wegen des Auftretens von $J(t)$ nur scheinbar unendlich ist, tatsächlich aber nur bis $[t/\sigma] - n + 1$ läuft.

Weiter rechnet man nach (28') mühelos das mittlere Schwankungsquadrat:

$$\Delta^2(t) = Nt(1 - 2N\sigma) + N^2\sigma^2 \quad \text{für } t > \sigma.$$

Die ganze Rechnung kann ebenso für einen Zähler erster Art mit der Auflösungszeit σ durchgeführt werden. Einen geschlossenen Ausdruck für das mittlere Schwankungsquadrat findet man allerdings nicht. Wendet man aber (30) an, so findet man asymptotisch

$$\Delta^2(t) \sim N_0 t / (1 + N_0 \sigma)^3. {}^1)$$

Schlussbemerkung: Es geht mir in dieser Note nicht darum, möglichst viele Beispiele durchzurechnen, als vielmehr darum, einen allgemeinen Formalismus anzugeben, der mir zur mathematischen Behandlung komplizierterer Zählansordnungen geeignet erscheint. Wie die Methode auf andere Probleme (Untersetzer u. dgl.) anzuwenden ist, dürfte klar sein.

¹⁾ VAN DER VELDEN und ENDT, lc.

Die Struktur des Ozon-Moleküls

von D. Melcher.

(22. XII. 1946.)

Zusammenfassung: Es wurde nach dem Ramanspektrum reinen flüssigen Ozons gesucht. Als Ergebnis zeigten sich trotz extrem langen Belichtungszeiten keine Raman-Linien. Diese Tatsache wird auf Grund der aus Elektronenbeugungsversuchen bekannten geometrischen Konfiguration des Moleküls diskutiert.

1. Einleitung.

Die Frage nach der Struktur des Ozons beschäftigte in den letzten zwanzig Jahren verschiedentlich die Physik und die physikalische Chemie, so dass die Zahl der darüber erschienenen Publikationen beträchtlich ist, hoffte man doch mit ihrer restlosen Abklärung eine tiefere Einsicht in das gesamte Problem der Sauerstoff-Dreielektronen-Bindung zu erhalten. Trotzdem die Ergebnisse sorgfältig ausgeführter Absorptionsmessungen im ultraroten Spektralgebiete vorliegen, ist es bis heute noch nicht möglich die Grundschwingungen des Moleküls vollkommen eindeutig festzulegen. Es schien daher gerechtfertigt, eine solche Zuordnung mit Hilfe des Ramaneffektes zu versuchen. Eine diesbezügliche Untersuchung war allerdings schon im Jahre 1932 und 1934 von SUTHERLAND und GERHARD^{1) 2)} an einem flüssigen O_3 - O_2 -Gemisch ohne Erfolg durchgeführt worden. Inzwischen hatte sich herausgestellt, dass auch reines flüssiges O_3 bei vorsichtiger Bearbeitung nicht so explosiv ist, wie man früher glaubte, und es wurde daher in der vorliegenden Arbeit ausschliesslich das Streulicht reinen flüssigen Ozons untersucht.

¹⁾ G. SUTHERLAND und S. L. GERHARD, Nature **130**, 241 (1932).

²⁾ G. SUTHERLAND und S. L. GERHARD, Proc. Roy. Soc. A. **141**, 515 (1934).

2. Theoretische Betrachtung über den Ramaneffekt¹⁾.

Während das Vorhandensein der reinen Schwingungsfrequenzen im ultraroten Spektrum an die Bedingung geknüpft ist, dass die durch eine einfallende elektromagnetische Welle erzwungene Schwingung von solcher Art ist, dass dabei das permanente elektrische Moment des Moleküls sich ändert, ist für das Auftreten einer Ramanfrequenz die Änderung des induzierten elektrischen Momentes notwendige Bedingung. Daraus lassen sich die Auswahlregeln, welche aus den theoretisch möglichen Schwingungsformen die sogenannten ramanaktiven bezeichnen, besonders im Falle einfacher Moleküle, leicht bestimmen.

Es sei M_i die i^{te} Komponente eines durch ein elektrisches Feld E der einfallenden Lichtwelle induzierten elektrischen Momentes, das mit den k Komponenten E_k durch den Polarisierbarkeitstensor α_{ik} verknüpft ist:

$$M_i = \sum_k \alpha_{ik} E_k.$$

Das α_{ik} ist eine Funktion der Normalkoordinate q und bedeutet den Polarisierbarkeitstensor der Elektronenwolke eines Moleküls bei festgehaltenen Kernen. Beim Übergang eines Moleküls vom Schwingungszustand mit der Quantenzahl v' in den Zustand der Quantenzahl v kann dann und nur dann die charakteristische Ramanfrequenz ausgestrahlt werden, wenn die Matrix

$$(\alpha_{ik})_{vv'} = \int_{-\infty}^{+\infty} \alpha_{ik}(q) \Psi_v(q) \Psi_{v'}^*(q) dq \neq 0 \text{ ist.}$$

Dabei ist die Eigenfunktion Ψ_v des v^{ten} Zustandes das Produkt der einzelnen Eigenfunktionen Ψ_{v_j} ($j = 1 \dots 3n-6$) des harmonischen Oszillators, welche jede nur von je einer einzigen Koordinate q_j abhängt: $\Psi_v = \Psi_{v_1} \cdot \Psi_{v_2} \dots \Psi_{v_{3n-6}}$. (n = Anzahl der Atome im Molekül).

Machen wir nun für $\alpha_{ik}(q)$ mit PLACZEK den Ansatz

$$\alpha_{ik}(q) = (\alpha_{ik})_0 + \Delta\alpha_{ik},$$

wobei $(\alpha_{ik})_0$ den Polarisierbarkeitstensor für $q = 0$ bedeutet, so liefert dieser Letztere, als von q unabhängige Grösse, zusammen mit den orthogonalen Eigenfunktionen $\Psi_v \Psi_{v'}^*$ keinen Beitrag zur

¹⁾ G. PLACZEK, Z. f. Phys. **70**, 84 (1931).

Matrix $(\alpha_{ik})_{rr'}$, währenddem der Ausdruck $\int_{-\infty}^{+\infty} \Delta \alpha_{ik}(q) \Psi_r(q) \Psi_{r'}^*(q) dq$ unmittelbar für den Ramaneffekt verantwortlich ist. Ist nun der Integrand I eine ungerade Funktion der q , d. h. $I(q) = -I(-q)$, so ist das Integral von $-\infty$ bis $+\infty = \text{Null}$ und der Übergang ist ramaninaktiv. I kann aus zwei Gründen eine ungerade Funktion werden:

- a) $\Psi_v \Psi_{v'}^*$ sei gerade, d. h. Δv_j (die Differenz zweier Quantenzahlen) sei gerade, aber gleichzeitig sei zufolge einer gewissen Molekülsymmetrie $\alpha_{ik}(q) = -\alpha_{ik}(-q)$, so ist I eine ungerade Funktion von q .
- b) $\Psi_r \Psi_{r'}^*$ sei ungerade, d. h. Δv_j sei ungerade und gleichzeitig auch noch zufolge der Molekülsymmetrie $\alpha_{ik}(q) = \alpha_{ik}(-q)$, so ist I eine ungerade Funktion von q .

PLACZEK¹⁾ hat nun die Symmetrien der 32 Kristallklassen daraufhin untersucht, wie sich in jedem einzelnen Falle die $\alpha_{ik}(q)$ bei Ausübung einer Deckoperation transformieren. Daraus lassen sich unter der Voraussetzung, dass $\Delta v_j = 1$ (also wie unter b) ungerade) sei, die Auswahlregeln für den Ramaneffekt bei gegebener Molekülsymmetrie angeben. Dabei ist aber zu beachten, dass erstens in I ein Ψ_{v_j} auch zufälligerweise Null werden könnte, und dass zweitens keine Angaben über die Intensität eines gemäss den obigen Auswahlregeln ramanaktiven Überganges gemacht werden können.

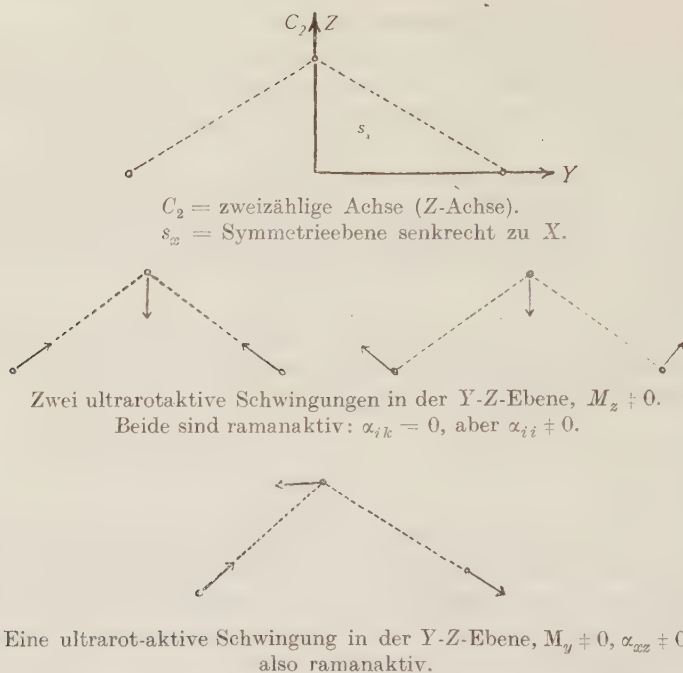
Die Ergebnisse der PLACZEK'schen Untersuchung kann man nun auf das Ozon-Molekül anwenden. Der folgenden Betrachtung werden die Resultate eines von SHAND und SPURR²⁾ ausgeführten Experimentes zugrunde gelegt. Diese Autoren haben die Molekülform mit Hilfe eines Elektronenbeugungsversuches an gasförmigem O_3 festgelegt und finden einen Valenzwinkel von $127^\circ \pm 3^\circ$ und einen mittleren Abstand zwischen dem zentralen und den äusseren Atomen von $1,25 \pm 0,02$ ÅE. Diese Daten stehen zwar im Widerspruch zu einer von ADEL und DENNISON³⁾ ausgeführten Ultrarot-Banden-Analyse, welche aus der Rotationsstruktur einer bestimmten Bande einen Valenzwinkel von 34° erhalten. Es steht jedoch als Resultat aller neueren Untersuchungen fest, dass für das Ozon-Molekül nur eine gewinkelte Struktur mit der Form eines gleichschenkligen Dreieckes in Frage kommt, so dass man sich im Sinne der Betrachtung

¹⁾ PLACZEK, l. c.

²⁾ W. SHAND und R. A. SPURR, J. Am. Chem. Soc. **65**, 179 (1943).

³⁾ A. ADEL und D. M. DENNISON, J. Chem. Phys. **14**, 379 (1946).

tung PLACZEKS auf die Kristallklasse C_{2v} beschränken kann, was folgendes ergibt:



Als Ergebnis dieser Betrachtung kann zusammenfassend gesagt werden, dass bei der in unserem Falle vorliegenden Molekülsymmetrie die Raman-Linien aller drei Grundschwingungen mit den obigen rein geometrisch abgeleiteten Auswahlregeln verträglich sind, und dass sie im Streuspektrum erwartet werden können. Neben dem Einfluss der Symmetrieeigenschaften eines Moleküls auf die Änderung der Polarisierbarkeit der Kernbewegung liegt aber auch noch ein solcher der Bindungstypen vor. Sind nämlich die Atome jonogen gebunden, so steht das Bindungselektron in erster Näherung nur unter der Einwirkung des ihm zugehörigen Kernes und die Polarisierbarkeit ist weitgehend unabhängig von den Abstandsveränderungen, die bei den Schwingungen auftreten. So zeigen z. B. Salze, deren jonogene Bindung eindeutig feststeht, keine Ramanstreuung. Meistens hat hingegen die Molekülbindung auch eine homöopolare Komponente, wodurch das Auftreten von Ramanlinien wieder möglich wird. So treten beim HCl, das zu 83% homöopolare Bindung aufweist, die Ramanlinien noch auf, während sie beim H₂F, das nur noch 40% homöopolaren Charakter hat, fehlen.

3. Versuchsanordnung.

a) *Verflüssigung des Ozons*: Als Ozongeneratoren dienten drei Berthelot-Rohre, die parallel an einer Sauerstoffbombe lagen. Der über P_2O_5 vorgetrocknete Sauerstoff durchströmte erst die zur Erreichung einer bessern Ausbeute in festem CO_2 eingebetteten und mit einer Wechselspannung eines Induktoriums betriebenen Ozonisatoren, dann, zwecks weiterer Ausfrierung von noch vorhandener Feuchtigkeit, eine ebenfalls mit festem CO_2 gekühlte Falle und endlich das in flüssigen Sauerstoff eingetauchte Verflüssigungsgefäß. In diesem wurde das Ozon mit Licht bestrahlt. Die Durchflussmenge war vorerst mit Hilfe eines photometrisch ausgewerteten Absorptionsversuches in einem Quarzgefäß (unter Beobachtung der im Ultravioletten liegenden Hartley-Bande) auf eine optimale Ausbeute einreguliert worden. Die drei Ozonisatoren, von denen jeder eine Entladungsfläche von ca. 150 cm^2 hatte, lieferten in 5 Stunden 6 cm^3 flüssiges O_3 . Trotzdem das den flüssigen Sauerstoff enthaltende unversilberte Dewargefäß oben mit einer dicken Filschicht abgeschlossen war, häuften sich im Verlaufe von ca. zwanzig Stunden soviele Eiskristalle an, dass das Gefäß zur Reinigung entleert und damit auch das flüssige O_3 erneuert werden musste. Das mittels der eben beschriebenen Verflüssigungsmethode angereicherte Ozon scheint weitgehend von eventuell mitverflüssigtem Sauerstoff frei zu sein. Enthielte es nämlich einen wesentlichen O_2 -Anteil, so müsste die um 1550 cm^{-1} verschobene O_2 -Ramanlinie bei der in dieser Untersuchung verwendeten Belichtungszeit von 90 Stunden beobachtet werden können. Dies war aber nicht der Fall. Im Gegensatz dazu erschienen sie bei SUTHERLAND und GERHARD (l. c.), die mit einer Mischung von 30% O_3 und 60% O_2 arbeiteten, schon nach 10 Stunden.

b) *Das Absorptionsgefäß* (siehe Fig. 1): Es bestand aus einem 17 cm hohen Rohr aus Quarzglas von 12 mm lichter Weite und war in zwei Teile *a* und *b* unterteilt. Der untere Teil *a* war 7 cm hoch und diente als eigentlicher O_3 -Behälter. Er trug je ein Zu- und Abflussrohr für den ozonisierten Sauerstoff. Das Abflussrohr war direkt mit der Atmosphäre in Verbindung, sodass das flüssige Ozon während der ganzen Belichtungsdauer unter Atmosphärendruck stand. Der obere Teil *b* war zur Vermeidung von Wasserbeschlügen evakuiert und abgeschmolzen. Die Zwischenwand und der obere Abschluss von *b* bestanden aus planparallelen aufgeschmolzenen

Quarzplatten. Auf dem Letztern war ein 45° -Prisma aufgekittet, durch welches das senkrecht nach oben fallende Streulicht auf den horizontal stehenden Spektralapparat gerichtet wurde. Das Prisma trug ferner eine mit Kanadabalsam aufgekittete Zylinderlinse. Damit auch das nach unten fallende Streulicht in den Spektralapparat gelange, war am untern Ende von *a* ein Metallspiegel befestigt, der aber wegen der direkten Berührung mit dem flüssigen Sauerstoff nicht mit Kanadabalsam, sondern mit Zementit längs des Bodenrandes von *a* gekittet werden musste. Es wurde darauf Wert gelegt, dass in Anbetracht der langen Belichtungszeiten, jeder Einfall von ungestreutem, also an Glasoberflächen reflektiertem

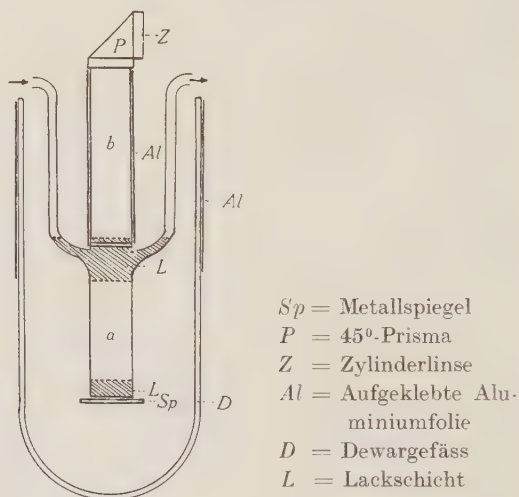


Fig. 1.

Licht, möglichst eliminiert sei. Zu diesem Zwecke war der untere Teil des Verflüssigungsgefäßes, wo sich der Metallspiegel befand, sowie die bei der freien Ozonoberfläche einmündenden Röhren mit einer schützenden Schicht aus schwarzem Lack von je ca. 1 cm Höhe versehen. Ferner trug der Teil *b* eine bis an die Metallfassung des Prismas reichende Hülle von reflektierender Aluminiumfolie, die gleichzeitig das Streulicht am Austritt aus *b* verhindern sollte. Ausserdem war der ganze obere Teil des Dewargefäßes ebenfalls durch eine aufgeklebte Folie gegen das einfallende Quecksilberlicht abgeschildert, um unnötige Reflexionen und damit ein Auftreffen dieses vom Ozon nicht gestreuten Lichtes auf den Metallspiegel zu verhindern.

c) *Lichtquelle und Spektralapparat* (gesamte Versuchsanordnung siehe Fig. 2).

Drei senkrecht brennende Hg-Gleichstromlampen waren mit Hilfe von Kondensorlinsen ($D/f = 1,0-1,2$) auf A abgebildet. Zwei Ventilatoren dienten zur Kühlung der Lampen, sowie zur Trockenhaltung der Wände des Dewargefäßes. Da das Ozon einerseits im Ultravioletten eine bis 3600 AE reichende Absorptionsbande (Hugginsbande) besitzt, anderseits ab 4300 AE bereits die Chappuisbande (Maximum bei 6010 AE) merklich absorbiert, kommt als Erregerfrequenz für die Ramanlinien nur die violette Hg-Linie von

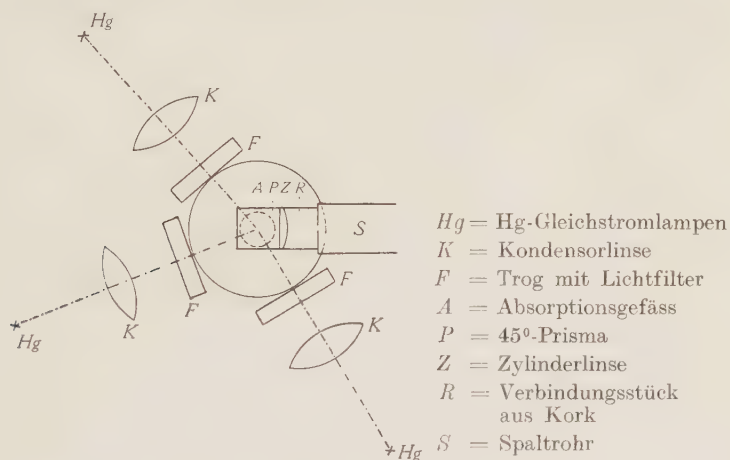


Fig. 2.
Versuchsanordnung von oben.

1047 AE in Frage. Dies hat den Nachteil, dass etwaige in der Nähe von 1300 AE liegende Streulinien durch den Untergrund der starken blauen Hg-Linie überdeckt werden. Ein Lichtfilter von 2,5 cm Dicke, bestehend aus einer Lösung von 1,25 gr metallischem Jod in 1 Liter CCl_4 , unterdrückt den blauen Untergrund auch in der Nähe der blauen Hg-Linie fast vollständig. Der verwendete Spektralapparat der Firma Schmidt & Haensch mit drehbarem Prisma hatte ein Öffnungsverhältnis von 1:7,3, und der Spalt befand sich in 5 mm Abstand von der Zylinderlinse und war mit dieser durch ein Korkröhrchen verbunden, dessen Randkurve der Oberfläche der Linse angepasst war. So konnte ein seitlicher Eintritt von diffusem Streulicht verunmöglicht werden. Die Dispersion des Spektralapparates betrug in der Nähe der beobachteten Frequenzen 32 AE pro mm. Als photographisches Aufnahmемaterial wurden die in

diesem Spektralgebiete besonders empfindlichen und durch ca. 5-stündige Einwirkung einer Hg-Dampf-Atmosphäre sensibilisierten Gelatine-Silberbromid-Platten der Firma Lumière verwendet.

d) *Justierung der Apparatur*: Das Verflüssigungsgefäß war an den beiden Zuleitungsröhren so gehalten, dass es sowohl um die Achse des Spaltrohres des Spektralapparates, als auch um die horizontal liegende und senkrecht darauf stehende Achse X (siehe Fig. 3) gedreht werden konnte. Zur Erleichterung der Justierung war am untern Ende des Verflüssigungsgefäßes (zwischen a und dem Metallspiegel in Fig. 1) ein Fadenkreuz (das übrigens nach der Justierung wieder entfernt wurde) angebracht. Dieses Fadenkreuz betrachtete man durch ein horizontiertes Fernrohr, welches auf die

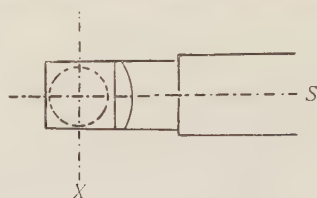


Fig. 3.

Spaltrohr S und Verflüssigungsgefäß von oben.

Zylinderlinse gerichtet wurde. Bei genügendem Abstand zwischen Objekt und Fernrohr, konnte sowohl das Fadenkreuz als auch der innere Rand des Metallringes, welcher das 45° -Prisma trug, beobachtet werden. Das ganze Gefäß wurde dann so um X gedreht, dass die Mitte des Fadenkreuzes in das Zentrum des genannten Metallringes zu liegen kam. Damit stand das Gefäß parallel zur Spaltebene des vorher horizontalierten Spektralapparates und musste nun noch unter Zuhilfenahme eines Lotes solange um die Achse S gedreht werden, bis die Achse der Zylinderlinse parallel zum Spalt stand. Schliesslich beleuchtete man den Metallspiegel (Fig. 1) mittels einer seitlich aufgestellten diffusen Lichtquelle. Unter Beobachtung der Objektivlinse des Spektralapparates konnte dieser nun noch seitlich (horizontal!) leicht verschoben werden, bis die genannte Linse maximal ausgeleuchtet war. Dadurch hatte man eine Kontrolle, dass die Achse des Spektralapparates auch mit der des zur Justierung benötigten Fernrohres übereinstimmte.

4. Versuchsergebnisse und deren Diskussion.

Trotz 90-stündiger Belichtungszeit konnten weder bei den Aufnahmen mit Lichtfilter, als auch bei denjenigen ohne Filter keine Spuren von Ramanlinien festgestellt werden. Es wurde also das

Ergebnis der Untersuchungen an Ozon-Sauerstoffgemischen von SUTHERLAND und GERHARD (l. c.) hier an reinem Ozon bestätigt.

Dieses Fehlen der Ramanlinien kann nun reell sein, oder aber auf der Unzulänglichkeit der Versuchsbedingungen beruhen. Wie aus den Intensitätsverhältnissen der ultraroten Schwingungsbanden ersichtlich ist¹⁾, kommen, wie übrigens fast alle bisherigen Bearbeiter des Problems feststellen, nur folgende vier Frequenzen als Grundschrwingungen in Frage: 710 cm^{-1} , 1040 cm^{-1} , 1710 cm^{-1} und 2105 cm^{-1} . Die zur eingestrahltcn Primärfrequenz von 4047 AE gehörigen rotverschobenen Ramanlinien, die ja sehr viel intensiver als die blauverschobenen wären, würden beziehungsweise bei 4166,3 AE, 4225,0 AE, 4353,1 AE und 4430,0 AE liegen. Man sieht also, dass die beiden letztgenannten Linien bereits in ein Spektralgebiet fallen, in dem die Absorption der Chappuisbande des Ozons wirksam wird, und ihr Fehlen im gestreuten Licht lässt höchstens auf nicht übermässig grosse Intensitäten schliessen. Die beiden in die Absorptionslücke fallenden Frequenzen, 710 cm^{-1} und 1040 cm^{-1} sind dadurch ausgezeichnet, dass ihnen mit grosser Wahrscheinlichkeit je eine symmetrische Grundschrwingung zugeordnet werden muss. JAKOLEWA und KONDRATJEW²⁾ haben nämlich die Frequenz 1040 cm^{-1} als Schwingungsterm im kurzwelligen Teil der im Ultraviolett liegenden Hugginsbande nachgewiesen. EBERHARDT und SHAND³⁾ dehnten diese Untersuchungen auf das langwellige Ende desselben Bandensystems aus und konnten die beobachteten Bandenkanten durch eine Formel darstellen, welche die Frequenzen 710 cm^{-1} und 1040 cm^{-1} als Schwingungsterme enthält. Berechnet man hingegen die Eigenschwingungen des Ozon-Moleküls unter Zugrundelegung der Moleküldaten von SHAND und SPURR (l. c.) und des üblichen Kraftansatzes von MECKE⁴⁾, so lassen sich nicht beide oben genannten Frequenzen als Grundschrwingungen darstellen. GLOCKLER und MATLAK⁵⁾ haben diese Diskrepanz der Theorie mit dem Experiment eliminiert, indem sie in ihrem Ansatz eine vierte Kraftkonstante einführten, welche einer gegenseitigen Beeinflussung der beiden Sauerstoff-Sauerstoff-Bindungen Rechnung trägt. Dadurch wird die Annahme, dass es sich bei den beiden Frequenzen, die auch im ultraroten Spektralgebiet mit der relativ grössten Intensität auftreten, um die beiden symmetrischen Grundschrwingungen handelt, auch mit der Theorie vereinbar. Bei der im

¹⁾ G. HETTNER, R. POLMANN und H. J. SCHUMACHER, Z. f. Phys. **91**, 372 (1934).

²⁾ A. JAKOLEWA und V. KONDRATJEW, Phys. Z. d. Sowjetunion **9**, 106 (1936).

³⁾ W. H. EBERHARDT und W. SHAND, J. Chem. Phys. **14**, 525 (1946).

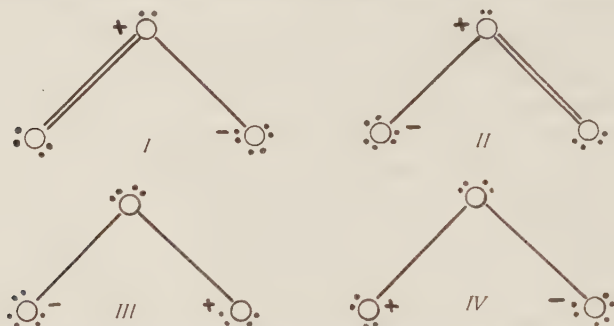
⁴⁾ R. MECKE, EUCKEN-WOLF, Hand- und Jahrbuch d. phys. Chemie **9**, II, 352.

⁵⁾ G. GLOCKLER und G. MATLAK, J. Chem. Phys. **14**, 531 (1946).

vorliegenden Experiment eingestrahlichten Wellenlänge von 4047 AE müssten also beide genannten Ramanlinien, sofern sie mit wesentlicher Intensität auftreten, beobachtbar sein.

Will man nun annehmen, dass dieses negativ ausgefallene Experiment durch eine spezifische Eigenschaft des Moleküls bedingt sei, so muss dies auf Grund des Strukturmodells diskutiert werden. Dabei ist ein Vergleich des Ozons mit dem Schwefeldioxyd, welches die gleiche Anzahl Valenzelektronen hat, naheliegend.

Die Struktur des Ozonmoleküls lässt sich nach SHAND und SPURR (l. c.) durch Resonanz zwischen den folgenden vier Typen darstellen:



Aus der offenbar sehr geringen Ramanaktivität muss man auf eine kleine Polarisierbarkeit des Moleküls schliessen. Diese Eigenschaft lässt sich am ehesten dadurch erklären, dass die im O_3 auftretenden Sauerstoffbindungen nur wenig Doppelbindungscharakter aufweisen, was unter zu Grundelegung der obigen Strukturen von zwei verschiedenen Gesichtspunkten aus abschätzen lässt:

- a) Das elektrische Moment beträgt gemäss den Messungen von LEWIS und SMYTH¹⁾ $0,49 \cdot 10^{-18}$ elst. E. (Dieser Wert wurde an einem flüssigen O_2-O_3 -Gemisch gemessen und ist daher wahrscheinlich etwas zu gross). Berechnet man das Dipolmoment andererseits aus der Strukturgruppe I, II (die Gruppe III, IV liefert keinen Beitrag) und der SHAND'schen Werte für den Valenzwinkel und den mittleren Atomabstand (127° bzw. 1,25 AE), so ergeben sich $2,68 \cdot 10^{-18}$ elst. E. Der Anteil von Struktur I, II ist also maximal 18%, d. h. die Sauerstoffbindungen haben im Ozonmolekül rund 9% Doppelbindungscharakter.
- b) Legt man der Abschätzung die Additivität der Kovalenzradien nach PAULING²⁾ zu Grunde, so ergibt sich für die Struktur I, II

¹⁾ G. L. LEWIS und P. C. SMYTH, J. Am. Chem. Soc. **61**, 3063 (1939).

²⁾ L. PAULING, The nature of the chemical bond Cornell University Press, 1939 p. 157.

ein Beitrag von 30%, d. h. der Doppelbindungscharakter beträgt 15%. Dabei wurden für die Werte in der Minimalbedingung für das Potential V

$$\frac{\partial V}{\partial D} = x_1 k_1 (D - D_1) + x_1 k_2 (D - D_2) + x_2 k_2 (D - D_3) + x_2 k_2 (D - D_4) = 0$$

eingesetzt:

k_1 = Kraftkonstante für die Doppelbindung,

k_2 = Kraftkonstante für die Einfachbindung.

x_1 = Gewicht der Struktur I, II

x_2 = Gewicht der Struktur III, IV.

D = experimentell ermittelter Atomabstand = 1,25 ÅE.

$D_1 = 0=0^+$ Abstand = 1,127 ÅE (nach PAULING)

$D_2 = 0^+-0^-$ Abstand = 1,334 ÅE

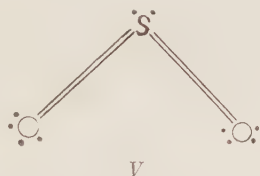
$D_3 = 0-0^+$ Abstand = 1,307 ÅE

$D_4 = 0-0^-$ Abstand = 1,327 ÅE

mit den Nebenbedingungen: $k_1:k_2 = 3:1$, $x_1 + x_2 = 1$.

Der erhaltene Wert von rund 15% bestätigt die Größenordnung des aus dem Dipolmoment erhaltenen Anteil an Doppelbindungscharakter.

Anmerkung: Der hier verwendete 0—0 Radius (0,66 ÅE) ist verschieden von dem von SHAND und SPURR verwendeten (0,74 ÅE, aus Messungen am H_2O_2), weshalb die Verschiedenheit der errechneten Doppelbindungsanteile verständlich ist (die genannten Autoren geben 30% an).



Das Schwefeldioxyd zeigt im Gegensatz zum Ozon keine anormalen Eigenschaften. Insbesondere ist es ramanaktiv und seine Grundschrwingungen können durch das übliche Valenzkraftmodell mit drei Kraftkonstanten dargestellt werden. Die konstruierbaren Strukturtypen sind dieselben wie beim O_3 . Da zudem noch die 3-d-Bahn zur Verfügung steht, darf im Prinzip auch eine Struktur V mit zwei Doppelbindungen und ohne formale Ladungen angeschrieben werden. PAULING¹⁾ ordnet dem Molekül die zu I, II analogen Strukturen zu. Berechnet man das Dipolmoment, welches von I, II erwartet würde (Valenzwinkel 120° , Atomabstand 1,43 ÅE²⁾), so ergeben sich $3,4 \cdot 10^{-18}$ elst. E., während das Experiment³⁾ den

¹⁾ L. PAULING, The nature of the chemical bond '229 (1939).

²⁾ V. SCHOMAKER und D. P. STEVENSON, J. Am. Chem. Soc. **62**, 1270 (1940).

³⁾ C. T. ZAHN, Phys. Rev. **27**, 455 (1926).

Wert von $1,61 \cdot 10^{-18}$ elst. E. feststellt. Der Typus I, II ist also mit ca. 48% am Gesamtmolekül beteiligt, und der Doppelbindungscharakter der Schwefel-Sauerstoffbindung muss sich im SO_2 auf mindestens 24% belaufen. Eventuell kann auch noch Struktur V einen weiteren Beitrag liefern.

Eine Abschätzung mittels Kovalenzradius kann hier nicht gemacht werden, da dieser für die S-S-Bindung im $^1\Delta$ -Zustand nicht bekannt ist. Setzt man den spektroskopischen Wert⁴⁾ von 0,95 ÅE (aus dem S_2 im $^3\Sigma$ -Zustand) ein, so ergibt sich eine S-O-Distanz, welche bereits grösser ist, als die experimentellen 1,43 ÅE des SO_2 , was auf einen starken Beitrag von S=O-Bindungen hindeutet.

Im Ozonmolekül weist also die Sauerstoff-Sauerstoff-Bindung bedeutend weniger Doppelbindungscharakter auf, als die Schwefel-Sauerstoff-Bindung im ramanaktiven SO_2 . Daraus wird eine schwache Polarisierbarkeit und als Folge davon eine geringe Ramanaktivität plausibel. Es muss jedoch bemerkt werden, dass die gegebenen Abschätzungen nur qualitativen Charakter haben.

Meinem verehrten Lehrer Herrn Prof. Dr. EDGAR MEYER, unter dessen Leitung die obige Arbeit ausgeführt wurde, bin ich für viele wertvolle Ratschläge und für wohlwollendes Interesse zu herzlichem Dank verpflichtet.

Zürich, Physikalisches Institut der Universität.

⁴⁾ G. HERZBERG, Molekülspektren I, Steinkopf Dresden 1939 p. 340.

Die Zerfallsenergien von O^{19} , Na^{25} , Mg^{27} , Al^{28} und K^{42}

von E. Bleuler und W. Zündi.

(11. I. 1947.)

Zusammenfassung: Die Grenzenergien der β -Spektren werden mit Hilfe von Absorptionsmessungen bestimmt und aus β - γ -Koinzidenzmessungen Schlüsse auf das Zerfallsschema gezogen. Die Zerfallsenergien betragen für O^{19} 4,5, Na^{25} 3,7, Mg^{27} 2,8, Al^{28} 4,5₃ und K^{42} 3,5₀ MeV. Bei Al^{28} und Mg^{27} führt der Zerfall nicht auf den Grundzustand des Folgekerns, sondern in angeregte Niveaus von 1,8₀ bzw. (vermutlich) 1,4₃ und 1,0₂ MeV. Auch bei den andern Kernen werden angeregte Niveaus festgestellt, mindestens je eines bei O^{19} (1,6 MeV) und Na^{25} (1,0 MeV), mindestens zwei bei K^{42} .

In Fortsetzung früherer Arbeiten*) haben wir die Zerfallsenergien und teilweise auch die Zerfallsschemata einiger weiterer leichter Kerne, welche bisher schlecht bekannt waren, untersucht. Die Methoden sind dieselben: Die aktiven Substanzen werden mit den Neutronen des Tensators¹⁾ hergestellt, die Energien der β - und γ -Strahlung durch Absorptionsmessungen bestimmt²⁾ und das Zerfallsschema mit Hilfe von β - γ -Koinzidenzmessungen abgeklärt. Vorläufige Resultate sind bereits kurz mitgeteilt worden**).

1. Al^{28} .

Wegen des einfachen Zerfallsschemas sei dieses Isotop zuerst diskutiert. Es zerfällt unter Aussendung eines β -Spektrums von ca. 3 MeV, das von einer γ -Strahlung von rund 2 MeV begleitet ist (vgl. MATTAUCH und FLÜGGE, Kernphysikalische Tabellen³⁾). Die Zerfallsenergie beträgt daher entweder (a) 3 MeV, falls das γ -Quant mit einem weichen Teilspektrum von 1 MeV gekoppelt ist, oder (b) 5 MeV, wenn der Zerfall immer auf ein angeregtes Niveau führt. Für die letztere Deutung spricht die ungefähre Übereinstimmung mit der Massendifferenz von Al^{28} und Si^{28} von $5,53 \pm 0,39$ MeV nach dem Isotopenbericht 1942⁴⁾, wobei für die Massenbestimmungen die Prozesse $Al^{27}(d, p)Al^{28}$ und $Si^{28}(\alpha, p)P^{31}$ benutzt worden sind. Ebenso wird diese Annahme durch Messungen von EKLUND und HOLE⁵⁾ gestützt, die in der Wilsonkammer keine

*) H.P.A. 19, 137 (1946); 19, 419 (1946); 20, 96 (1947).

**) H.P.A. 18, 262 (1945); 19, 421 (1946).

Anzeichen für ein weiches Teilspektrum finden. Andere Gründe sprechen jedoch für den Wert (a): 1. Der kleinere Wert der Zerfallsenergie passt besser in die sonst monoton abnehmende Folge der Massendifferenzen der Kerne mit gleichem Neutronenüberschuss:

Kern:	Be ⁸	B ¹²	N ¹⁶	F ²⁰	Na ²⁴	Al ²⁸	P ³²	Cl ³⁶
ΔE :	16	12–14	10,3	7,2	5,5	3 oder 5	1,7	~ 0 MeV.

2. HUBER, LIENHARD UND WÄFFLER⁶) gelang der Nachweis des Kernphotoeffektes Si²⁸ (γ, n) Si²⁷ mit der Li- γ -Strahlung (17,2 MeV). Die Energietönung wäre nach ⁴) im Falle (a) $-15,9 \pm 0,6$ MeV, im Falle (b) $-18,2 \pm 0,5$ MeV, so dass die Reaktion nur für (a) möglich ist. Die aus der Reaktion Si²⁸ (α, p) P³¹ berechnete Masse von Si²⁸ müsste also zu klein sein, was leicht dadurch erklärt werden könnte, dass die Protonengruppe mit der grössten Energie nicht in den Grundzustand von P³¹, sondern in einen angeregten Zustand führt.

β - γ -Koinzidenzen. Durch Koinzidenzmessungen konnte die Entscheidung eindeutig getroffen werden. Al²⁸ wurde durch Bestrahlung von Si-Pulver hergestellt (Si²⁸(n, p)Al²⁸) und die Absorption der β -Strahlen und der β - γ -Koinzidenzen gemessen. Die Dicke der Quelle betrug 0,218 g/cm². Das Resultat zeigt Fig. 1. Die Absorptionskurve der Koinzidenzen ist identisch mit derjenigen des β -Spektrums. Jedes β -Teilchen ist daher mit einem γ -Quant gekoppelt, sodass das Zerfallsschema der Nebenfigur und der Wert (b) der Zerfallsenergie anzunehmen ist. Die Diskrepanz mit den erwähnten Folgerungen aus der Beobachtung des Kernphotoeffektes wird durch genauere Betrachtung der fraglichen Energietönungen gelöst.

Zerfallsenergie. Die Grenzenenergie des β -Spektrums ergibt sich aus der Absorptionskurve zu $2,7_5 \pm 0,10$ MeV, die γ -Energie, gemessen durch Absorption der Sekundärelektronen, zu $1,8_0 \pm 0,10$ MeV (Fehlergrenzen). Den gleichen Wert der γ -Energie erhält Iron⁷) im γ -Spektrographen. EKLUND und HOLM⁵) erhalten in der Wilsonkammer 2,98 und 2,05 MeV, jedoch ohne Korrektur für Vielfachstreuung, welche die Werte etwas erniedrigen würde. ALICHANOW, ALICHANIAN und DZELEPOW⁸) messen mit einem Halbkreispektrographen $E_\beta = 3,00$ MeV. Dieser ergibt jedoch häufig zu hohe Werte, vermutlich wegen des grossen Öffnungswinkels, wie die Resultate für N¹³ (1,4 statt 1,2 MeV), P³² (2,05 statt 1,72 MeV) und Mn⁵⁶ (3,2 statt 2,85 MeV) zeigen. Die übrigen frühern Energiebestimmungen können mangels Unterlagen nicht diskutiert werden.

Mit $E = 2,75$ MeV und $t = 2,3$ min wird die für die Diskussion des Übergangscharakters häufig benutzte Grösse $\log ft = 4,8$ (vgl. KONOPINSKI⁹). Nach ITOH¹⁰) ordnen sich die Werte von $\log ft$ in Gruppen, deren Schwerpunkte etwa bei 3,6, 5,1 und 7,4 liegen. Die ersten beiden sollen erlaubten Übergängen, die dritte Gruppe einfach verbotenen Spektren entsprechen. Der Zerfall von Al^{28} in das angeregte Niveau von Si^{28} ist demnach erlaubt, derjenige in den Grundzustand, mit einer Grenzenenergie von $4,55 \pm 0,2$ MeV, mindestens einfach verboten.

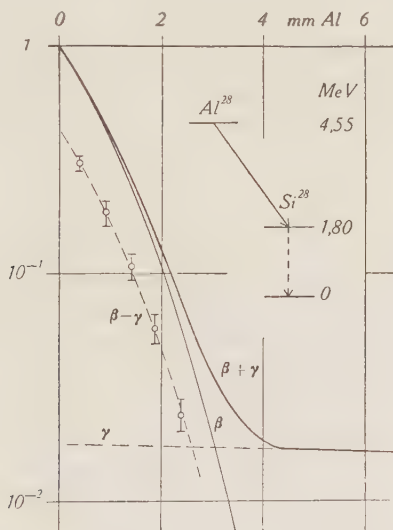


Fig. 1.

Al^{28} : Absorption des β -Spektrums und der β - γ -Koinzidenzen, in willkürlichen Einheiten. Die beiden Absorptionskurven sind identisch.

Atommasse: Unter Zugrundelegung des massenspektrographischen Wertes von $26,9898.0 \pm 0.8$ für die Masse von Al^{27} (4)) erhält man aus der Energietönung des Prozesses $Al^{27}(d, p)Al^{28}$ von $5,49 \pm 0,06$ MeV (11)) für Al^{28} : $27,9904.9 \pm 1.1$. Entsprechend dem in den Isotopenberichten üblichen Vorgehen sind dabei die Quadrate der Fehlergrenzen addiert worden. Aus der Zerfallsenergie von Al^{28} folgt für Si^{28} die Masse: $27,9856.0 \pm 2.4$. Andererseits muss Si^{27} , mit einer Zerfallsenergie von $3,64 \pm 0,15$ MeV, eine Masse von $26,9948.0 \pm 1.8$ haben. (Die Bestimmung dieser Masse aus der Schwellenenergie der Reaktion $Al^{27}(p, n)Si^{27}$ dürfte weniger sicher sein). Für den Kernphotoeffekt $Si^{28}(\gamma, n)Si^{27}$ folgt aus diesen Massen die Energietönung $Q = -16,9 \pm 0,3$ MeV. Bei

einer Quantenenergie von 17,2 MeV ist er also energetisch knapp möglich, wenn auch, in Übereinstimmung mit dem experimentellen Befund, nur ein kleiner Wirkungsquerschnitt erwartet werden kann.

Die gegebene Masse von Si^{28} ist um 1,17 TME kleiner als diejenige, welche aus der Reaktion $\text{Si}^{28}(\alpha, p)\text{P}^{31}$ berechnet werden kann. Offenbar führt hier die energiereichste Protonengruppe auf ein Niveau bei $1,1 \pm 0,4$ MeV.

Der Vergleich der gefundenen Massen mit den Werten, die von BARKAS¹²⁾ unter Annahme eines kontinuierlichen Aufbaues berechnet worden sind, zeigt, dass Si^{28} um rund 1 MeV zu leicht ist. Dem entspricht die Tatsache, dass die Zerfallsenergie von Al^{28} in der Reihe der ähnlichen Kerne (siehe oben) zu gross ist. Die starke Bindung von Si^{28} ist wohl der Grund für die grosse relative Häufigkeit dieses Elementes (vgl. WEFELMEIER¹³⁾).

2. O^{19} .

Aus der Halbwertsdicke der Absorptionskurve bei dicker Quelle erhalten HUBER, LIENHARD, SCHERRER und WÄFFLER¹⁴⁾ eine Zerfallsenergie von $\geq 3,2$ MeV, wobei das Gleichheitszeichen im Falle eines einfachen Spektrums gilt. Zu einem ähnlichen Resultat (~ 3 MeV) gelangen SEREN, MOYER und STURM¹⁵⁾, die O^{19} durch Neutroneneinfang aus O^{18} herstellen. Ausserdem weisen sie eine γ -Strahlung nach, so dass der Zerfall sicher nicht einfach ist. Es ist zu vermuten, dass die wahre Zerfallsenergie bedeutend höher liegt, besonders auch deshalb, weil die schwereren Kerne mit gleichem Neutronenüberschuss Ne^{23} und Na^{25} grössere Zerfallsenergien haben (4,3 und 3,7 MeV), im allgemeinen aber innerhalb einer solchen Reihe die Werte mit steigendem Atomgewicht abnehmen (vgl. Al^{28}).

LiF -Pulver wurde bestrahlt ($\text{F}^{19}(n, p)\text{O}^{19}$) und in zylindrischer Anordnung, bei einer Schichtdicke von $0,31 \text{ g/cm}^2$, untersucht. Wegen der Störaktivitäten von N^{16} (7,35 sek), F^{20} (12 sek) und F^{18} (107 min) erforderte die Auswertung einige Mühe. Die Halbwertszeit, gefunden aus über 20 Messreihen, beträgt $27,0 \pm 0,5$ sek (mittl. stat. Fehler), ist also etwas kleiner als der Literaturwert von 31 sek¹⁶⁾. Die Absorptionskurve (Fig. 2) lässt eine schwache γ -Strahlung und ein komplexes β -Spektrum erkennen. Für das einfachste Zerfallsschema (Nebenfigur) erhält man die beste Übereinstimmung mit den Messpunkten durch die Zerlegung:

β_{I} : $30 \pm 10\%$ $4,5 \pm 0,3$ MeV (Übergang in den Grundzustand);
 β_{II} : $70 \pm 10\%$ $2,9 \pm 0,3$ MeV (Übergang in angeregtes Niveau).

Eine kleinere Maximalenergie kann nicht gewählt werden, da sie mit den Intensitäten bei grossen Absorberdicken nicht vereinbar wäre; bei einer grössern wäre eine viel stärkere γ -Strahlung zu erwarten. Beide Übergänge sind erlaubt: $\log ft = 5,5$ bzw. $4,2$. Der zweite Wert scheint etwas klein, es ist jedoch möglich, dass in Wirklichkeit zwei oder mehrere Übergänge auf benachbarte Niveaus führen, was mit dieser Methode nicht festgestellt werden kann.

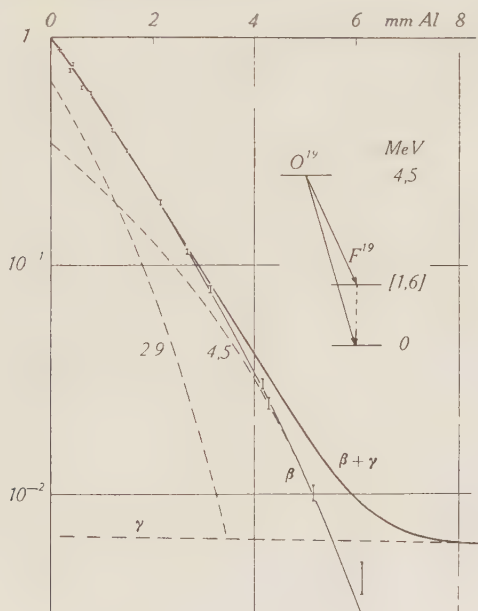


Fig. 2.

O^{19} : Absorptionskurve des β -Spektrums, zerlegt in zwei Komponenten von 4,5 und 2,9 MeV.

Mit einer Masse von $19,0045.4 \pm 1.2$ für F^{19} wird diejenige von O^{19} $19,0093.7 \pm 3.5$.

3. Na^{25} .

HUBER, LIENHARD, SCHERRER und WÄFFLER¹⁷⁾ entdeckten dieses Isotop bei Bestrahlung von Mg mit den Li- γ -Strahlen: $Mg^{26}(\gamma, p)Na^{25}$. Die Halbwertszeit beträgt $61,3 \pm 2,4$ sek (Fehlergrenze). Ebenso können sie in der Abklingkurve der Aktivitäten, die bei Bestrahlung von Mg mit Ra-Be-Neutronen erzeugt werden, neben Na^{24} (14,8 h), Mg^{27} (9,6 min) und Ne^{23} (40,7 sek) eine ähnliche

Komponente von 64 ± 6 sek nachweisen. Aus der Halbwertsdicke der Absorptionskurve erhalten sie eine Zerfallsenergie $E \geq 3,4$ MeV.

Zur unabhängigen Bestimmung der Halbwertszeit bestrahlten wir Mg mit Be-*d*-Neutronen (Maximalenergie 5,7 MeV). Die störenden Aktivitäten von Na^{24} und Ne^{23} treten wegen des Gamow-Faktors nicht mehr merkbar auf, da die zu ihnen führenden Prozesse mit 4,5 und 5,3 MeV endotherm sind. Die Bildung von Mg^{27} wird durch Abschirmung mit Cd herabgesetzt. Die Abfallkurve ist über 7 Halbwertszeiten exponentiell mit einer Periode von $59,2 \pm 1,3$ sek (mittl. stat. Fehler).

Die getroffene Zuordnung der Aktivität konnte chemisch bestätigt werden. Da die normale Methode, das entstandene Na aus einer Lösung des bestrahlten Mg-Salzes zu fällen, undurchführbar ist, haben wir ein neues Verfahren angewendet, das in gewissen Fällen die chemische Abtrennung sehr erleichtert: Eine Aufschlammung von feinstem MgO-Pulver in Wasser wird mit Li-*d*-Neutronen bestrahlt (Maximalenergie 14,5 MeV). Beim Prozess $\text{Mg}^{25}(n, p)\text{Na}^{25}$ erhalten die entstehenden Na^{25} -Ionen Rückstossenergien bis zu 0,9 MeV, so dass sie zum Teil den Kristallverband verlassen und als Ionen im Wasser bleiben. Nach der Bestrahlung wird die Aufschlammung gefiltert und das Wasser, das die aktive Substanz, aber nur wenige andere Ionen enthält, untersucht. Bei dem verwendeten Pulver konnten ca. 30% der Aktivität im Wasser nachgewiesen werden. Die Fällung der aktiven Substanz als Na-Salz gelang jedoch nur andeutungsweise, da die einzige Reaktion, die sich als einigermaßen brauchbar erwies (Fällung als Na-Pyroatimoniat), zu langsam vor sich ging.

Es konnte indessen festgestellt werden, dass die Aktivität nicht einem Mg-Isotop zuzuschreiben ist, da die Fällung als $\text{Mg}(\text{NH}_4)_2(\text{SO}_4)_2$ erfolglos blieb, trotzdem sie in 60 sek durchgeführt wurde und bei Mg^{27} quantitativ verlief. Ebenso wurde die Zuordnung zu einem Ne-Isotop ausgeschlossen: Das Wasser wurde 30 sek ausgekocht, ohne dass sich die Aktivität merklich verringerte. Aus einer bestrahlten NaNO_3 -Lösung konnten dagegen in 10 sek über 99% des aktiven Neons ($\text{Na}^{23}(n, p)\text{Ne}^{23}$) ausgetrieben werden. Die Zuordnung zu einem Na-Isotop ist somit eindeutig.

Die Absorptionskurve wurde in zylindrischer Anordnung, bei einer Schichtdicke von 2,4 mm Wasser, aufgenommen. Wegen der kleinen Präparatstärke konnte sie nur bis zu einer Intensität von 3% des Anfangswertes verfolgt werden (Fig. 3). Die Messpunkte lassen sich gut durch eine normale Absorptionskurve darstellen, welche einer Energie von 3,4 MeV entspricht, in Übereinstimmung

mit der frühern Angabe¹⁷⁾. In Sonderversuchen mit Blei- und Messingzählrohren wurde jedoch eine schwache γ -Strahlung festgestellt. Das Verhältnis der γ -Empfindlichkeiten ($\varepsilon_{Pb}/\varepsilon_{Mc} = 2 \pm 1$) weist auf eine Quantenenergie von mehr als 0,5 MeV hin. Die Intensität ist aber so klein, dass nicht jedes β -Teilchen mit einem γ -Quant gekoppelt sein kann, so dass ein komplexes β -Spektrum vorliegen muss. Bei Annahme von zwei Teilspektren (Nebenfigur) erhält man als beste Zerlegung:

β_I : 55% $3,7 \pm 0,3$ MeV (Übergang in den Grundzustand)

β_{II} : 45% 2,7 MeV (Übergang in angeregtes Niveau).

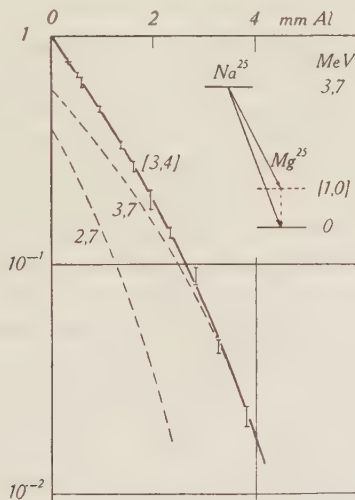


Fig. 3.

Na^{25} : Absorptionskurve des β -Spektrums, zerlegt in zwei Komponenten von 3,7 und 2,7 MeV.

Beide Übergänge sind erlaubt mit $\log ft = 5,2$ und $4,7$. Diese Analyse ist sehr unsicher, die Zerfallsenergie wird hingegen innerhalb der gegebenen Grenzen liegen. Koinzidenzmessungen wären hier, wie bei O^{19} , von grossem Nutzen, sind aber aus Intensitätsgründen nicht durchführbar.

Bei einer Masse von $24,9937.3 \pm 1.8$ für Mg^{25} (4)) wird diejenige von Na^{25} $24,9977.1 \pm 3.7$.

4. Mg^{27} .

Wie bei Al^{28} besteht hier eine Unsicherheit in der Zuordnung einer γ -Strahlung. Nach EKLUND und HOLE⁵⁾ ist das β -Spektrum einfach mit einer Grenzenergie von $1,77 \pm 0,09$ MeV (Wilsonkammer). Zusammen mit ihrer γ -Energie von $1,05 \pm 0,08$ MeV ergibt sich eine Zerfallsenergie von $2,82 \pm 0,17$ MeV. Im Isotopenbericht 1942⁴⁾ wird dagegen ein komplexer Zerfall angenommen.

Zur Untersuchung der β - γ -Koinzidenzen wurden Al-Plättchen von 1 mm Dicke bestrahlt ($\text{Al}^{27}(n, p)\text{Mg}^{27}$). Die Absorptionskurve der Koinzidenzen, gemessen bis zu 7% der Intensität ohne Absorber, ist identisch mit derjenigen des β -Spektrums: Jeder Zerfall führt, wie bei Al^{28} , auf ein angeregtes Niveau des Endkerns.

Um die Absorptionskurve des β -Spektrums aus dünner Schicht messen zu können, wurde Mg^{27} aus dem bestrahlten Al chemisch abgetrennt. Da die Fällung aus der Lösung eines Al-Salzes schwierig ist, wurde die bei Na^{25} beschriebene Methode angewendet: Eine Aufschlammung von Al_2O_3 wurde bestrahlt und die ins Wasser ausgetretenen Rückstossatome als $\text{Mg}(\text{NH}_4)_2(\text{SO}_4)_2$ gefällt. Aus den Schichtdicken, welche zur Absorption auf den 2^n -ten Bruchteil der Intensität ohne Absorber notwendig sind, werden die Werte $E_n = 1,62, 1,62, 1,65, 1,66, 1,67, 1,68, 1,68, 1,71$ abgelesen (vgl. 2)). Die mangelhafte Konstanz deutet auf ein komplexes Spektrum hin. Tatsächlich treten nach ITOH⁷⁾ γ -Energien von 0,64, 0,84 und 1,02 MeV ($\pm 3\%$) auf. Die Intensitäten sind unbekannt, da uns nur ein Bericht¹⁸⁾ über diese Arbeit zugänglich ist. Aus der Zählrohrempfindlichkeit ist auf eine mittlere γ -Energie von $1,1 \pm 0,1$ MeV pro Zerfall zu schliessen, während die Verteilung der Comptonelektronen in der Wilsonkammer nach RICHARDSON¹⁹⁾ eine mittlere γ -Energie von 0,88 MeV ergibt. Es erscheint somit gegeben, versuchsweise β -Übergänge auf zwei Niveaus von 1,02 und 1,48 ($= 0,64 + 0,84$) MeV, im Intensitätsverhältnis von etwa 3:1, anzunehmen. Unter diesen Voraussetzungen erhält man vollkommene Übereinstimmung mit der β -Absorptionskurve für eine Gesamtenergie von 2,79 MeV. In Anbetracht der Unsicherheit der Deutung geben wir für die Zerfallsenergie den Wert $2,80 \pm 0,25$ MeV. Beide Übergänge (1,78 und 1,32 MeV) sind bei einer Halbwertszeit von 9,58 min⁵⁾ erlaubt: $\log ft = 4,8$ bzw. 4,7, derjenige in den Grundzustand mindestens einfach verboten.

Die Masse von Mg^{27} wird $26,9928.1 \pm 2.3$. Mit Hilfe der Energie-tönung der Reaktion $\text{Mg}^{26}(d, p)\text{Mg}^{27}$ von $4,08 \pm 0,05$ MeV (¹¹⁾) berechnet sich die Masse von Mg^{26} zu $25,9906.0 \pm 2.4$. Dieser Wert

stimmt mit demjenigen überein, der mit Hilfe der Reaktion $Na^{23}(\alpha, p)Mg^{26}$ gefunden wird ($25,9903.7 \pm 4$).

O^{19} , Na^{25} und Mg^{27} sind Glieder einer ausgedehnten Reihe instabiler Kerne mit gleichem Neutronenüberschuss $N-Z=3$ (isotoper Spin $T_z = 3/2$). Fig. 4 gibt einen Überblick der Zerfallsenergien und -schemata. Es ist offenbar, dass sich die neuen Werte für O^{19} und Mg^{27} besser einordnen als die früheren. Dagegen ist das Verhalten von Mg^{27} insofern anomal, als der Übergang in den Grundzustand verboten ist, während er bei sämtlichen übrigen Kernen erlaubt zu sein scheint.

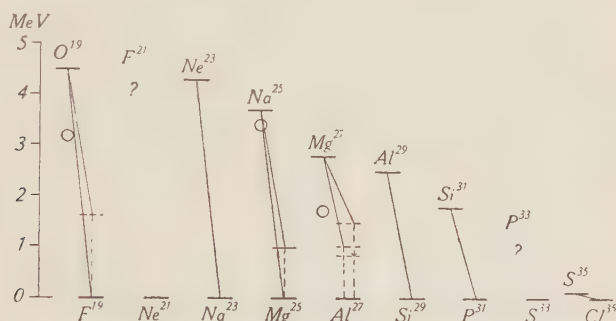


Fig. 4.

Zerfallsschemata der Kerne mit $T_z = 3/2$

o Frühere Werte der Zerfallsenergie.

5. K^{42} .

Das β -Spektrum dieses Isotopes, das mit 12,4 h Halbwertszeit in Ca^{42} zerfällt, hat nach KURIE, RICHARDSON und PAXTON²⁰) eine Grenzenergie von 3,5 MeV, wobei ein weiches Teilspektrum festgestellt werden kann (Wilsonkammer).

K^{42} wurde durch (n, α) -Prozess aus Sc^{45} hergestellt. Herrn Privatdozent Dr. G. JOYET (Lausanne) sind wir für die Überlassung des Scandiums, sowie für die chemische Abtrennung des K^{42} zu grossem Dank verpflichtet. Die Absorptionskurve (Fig. 5) ergibt eine Maximalenergie von $3,50 \pm 0,12$ MeV. Die Anfangsneigung deutet jedoch auf eine weichere Komponente von rund 30% Intensität hin, deren Energie zu etwa 1,8 MeV abgeschätzt werden kann. Mit Hilfe von Koinzidenzmessungen wurde das mit der γ -Strahlung gekoppelte β -Spektrum genauer untersucht. Die 3,5 MeV-Komponente gibt zu keinen Koinzidenzen Anlass und führt daher vermutlich in den Grundzustand (bzw. in einen angeregten Zustand von

höchstens 30 keV). Die Form der Absorptionskurve der weichen Komponente ($\sim 1,8$ MeV) weicht stark von derjenigen eines einfachen Spektrums ab, so dass diese komplex sein muss. Ebenso ist die γ -Strahlung inhomogen, was aus der Absorptionskurve der Sekundärelektronen geschlossen werden kann. Eine genaue Angabe

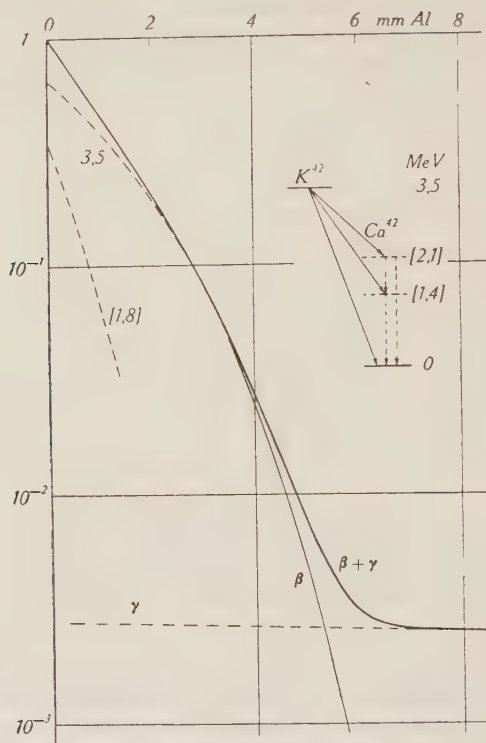


Fig. 5.

K^{42} : Absorptionskurve des β -Spektrums, zerlegt in zwei Komponenten von 3,5 und 1,8 MeV. Die letztere ist, wie β - γ -Koinzidenzen und γ -Energien zeigen, komplex (mögliche Zerlegung: 1,4 und 2,1 MeV).

des Zerfallsschema wird jedoch nur nach Messung der γ -Energien im Spektrographen möglich sein. Für den Fall von nur zwei Niveaus (siehe Nebenfigur) wären diese bei etwa 1,4 und 2,1 MeV anzunehmen. Alle Übergänge sind verboten: $\log ft - 8,0, 7,7$ und $7,1$ (in der Reihenfolge abnehmender Grenzenergie).

Die Masse von K^{42} kann nicht angegeben werden, da diejenige von Ca^{42} unbekannt ist.

Zusammenfassung.

In der Zusammenstellung der Resultate der Tabelle 1 bedeutet E_I die Zerfallsenergie und p_I den Bruchteil der Zerfälle in den Grundzustand des Folgekerns. E_{II} ist die Grenzenergie der weichen Teil-spektren. Unter E_γ ist die Energie der γ -Strahlung gegeben, sofern diese gemessen wurde. Eingeklammerte Werte sind unsicher.

Tabelle 1.

Kern	$E_I(\text{MeV})$	$p_I(\%)$	$\log ft$	$E_{II}(\text{MeV})$	$p_{II}(\%)$	$\log ft$	E_γ
O^{19}	$4,5 \pm 0,3$	30 ± 10	5,5	$2,9 \pm 0,3$		4,2	
Na^{25}	$3,7 \pm 0,3$	(55)	(5,2)	(2,7)		(4,7)	
Mg^{27}	$2,8_0 \pm 0,2$	<2	>7,1	$1,7_8$	~ 75	4,8	1,02
				$1,3_2$	~ 25	4,7	$0,64 \pm 0,84^7)$
Al^{28}	$4,5_5 \pm 0,2$	<2	>7,5	$2,7_5 \pm 0,1$	100	4,8	$1,8_0 \pm 0,1$
K^{42}	$3,5_0 \pm 0,12$	70 ± 10	8,0	(2,1)	(17)	(7,7)	(1,4)
				(1,4)	(13)	(7,1)	(2,1)

Tabelle 2 enthält die neu berechneten Massenwerte, soweit sie von den Angaben des Isotopenberichtes 1942⁴⁾ abweichen.

Tabelle 2.

O^{19}	$19,0093.7 \pm 3.5$	Al^{28}	$27,9904.9 \pm 1.1$
Na^{25}	$24,9977.1 \pm 3.7$	Si^{27}	$26,9948.0 \pm 1.8$
Mg^{26}	$25,9906.0 \pm 2.4$	Si^{28}	$27,9856.0 \pm 2.4$
Mg^{27}	$26,9928.1 \pm 2.3$		

Unsern verehrten Lehrer, Hrn. Prof. Dr. P. SCHERRER, danken wir für die Ermöglichung und Förderung dieser Arbeit. Dem Jubiläumsfonds der ETH. sind wir für finanzielle Unterstützung der Untersuchungen zu Dank verpflichtet. Hrn. Dr. E. Jakobi danken wir für wertvolle Mitarbeit bei der Ausarbeitung und Durchführung der chemischen Trennungen.

Zürich, Physikalisches Institut der ETH.

Literaturverzeichnis.

- 1) BLEULER und ZÜNTI, H.P.A. **19**, 137 (1946).
- 2) BLEULER und ZÜNTI, H.P.A. **19**, 375 (1946).
- 3) MATTAUCH und FLÜGGE, Kernphys. Tabellen (1942).
- 4) FLÜGGE und MATTAUCH, Phys. Z. **44**, 181 (1943).
- 5) EKLUND und HOLE, Ark. Mat. Astr. Fys. **29 A**, Nr. 26 (1943).

- ⁶⁾ HUBER, LIENHARD und WÄFFLER, H.P.A. **17**, 195 (1944).
- ⁷⁾ ITOH, Proc. phys. math. Soc. Japan **23**, 605 (1941).
- ⁸⁾ ALICHANOW, ALICHANIAN und DŽELEPOW, Nature **136**, 257 (1935).
- ⁹⁾ KONOPINSKI, Rev. mod. Phys. **15**, 209 (1943).
- ¹⁰⁾ ITOH, Proc. phys. math. Soc. Japan **22**, 531 (1940).
- ¹¹⁾ ALLEN und CLAVIER, Nature **158**, 832 (1946).
- ¹²⁾ BARKAS, Phys. Rev. **55**, 691 (1939).
- ¹³⁾ WEFELMEIER, Z. f. Physik **107**, 332 (1937).
- ¹⁴⁾ HUBER, LIENHARD, SCHERRER und WÄFFLER, H.A.P. **18**, 221 (1945).
- ¹⁵⁾ SEREN, MOYER und STURM, Phys. Rev. **70**, 561 (1946).
- ¹⁶⁾ NAHMIA und WALLEN, C. R. Paris **203**, 71 (1936).
- ¹⁷⁾ HUBER, LIENHARD, SCHERRER und WÄFFLER, H.P.A. **17**, 139 (1944).
- ¹⁸⁾ SEABORG, Rev. mod. Phys. **16**, 1 (1944).
- ¹⁹⁾ RICHARDSON, Phys. Rev. **53**, 124 (1938).
- ²⁰⁾ KURIE, RICHARDSON und PAXTON, Phys. Rev. **49**, 368 (1936).

Zur Theorie der Elektronen-Plasmaschwingungen

von F. Borgnis.

(3. I. 1947.)

Die Theorie der kurzwelligen Elektronenschwingungen in einem Gasentladungs-Plasma wird von einem verallgemeinerten Standpunkt aus behandelt. Es zeigt sich, dass die von LANGMUIR und TONKS herrührende Behandlung des ebenen Problems, die zu dem Begriff der „Langmuirfrequenz“ geführt hat, erweitert werden muss, um das selbständige Auftreten stationärer Schwingungen in einem Plasma zu beschreiben und dass die Frequenz solcher Schwingungen, die sich zwischen den Begrenzungen einer Entladungsstrecke erregen können, im allgemeinen nicht mit der Langmuirfrequenz identisch ist.

1. Einleitung.

Das Auftreten sehr kurzwelliger Elektronenschwingungen in Gasentladungen ist seit langem bekannt. Die Natur der Gasentladungen bringt es mit sich, dass die Physik dieser „Plasmaschwingungen“ eine recht komplizierte ist; sowohl die theoretischen als auch die experimentellen Untersuchungen über diesen Gegenstand lassen daher noch eine Menge ungeklärter Fragen offen.

Unter den theoretischen Betrachtungen spielt die von LANGMUIR und TONKS¹⁾ zuerst aufgestellte Theorie eine besondere Rolle, die zum Begriff der „Langmuirfrequenz“ geführt hatte. Diese Theorie sowie spätere Erweiterungen betrachten ein quasineutrales Plasma, bei dem die Elektronen aus ihrer mittleren „Ruhelage“ heraus kleine Verschiebungen erleiden, worauf sie um diese Ruhelage periodische Bewegungen mit der „Langmuirfrequenz“ ausführen. Solche Betrachtungen sind jedoch nicht geeignet, die *Anfachung* solcher Schwingungen zu beschreiben. Das Problem der Erzeugung der Schwingungen in einem Plasma lässt sich durch die Bestimmung des ohmschen Widerstandes behandeln, den eine Entladungsstrecke gegenüber einer von aussen aufgeprägten Wechselspannung darstellt. In Bereichen, in denen dieser Widerstand negativ wird, kann die Anordnung Wechselstromleistung nach aussen abgeben und damit Schwingungen anfahren. Die Frequenz dieser Schwingungen braucht nicht notwendigerweise mit der „Langmuirfrequenz“ zusammenzufallen.

Die folgenden Betrachtungen bringen zunächst eine verallgemeinerte Wiedergabe der Langmuirschen Theorie sowie einer von LINDER²⁾ herrührenden Erweiterung, wobei hier etwas genauer auf die zugrundeliegenden Voraussetzungen geachtet wird. Im folgenden werden sodann die Elektronen nicht mehr als an eine Ruhelage gebunden angesehen, sondern bei ihrer Strömung durch das Plasma hindurch verfolgt, wobei Pendelungen um die mittlere Gleichstromgeschwindigkeit auftreten. Diese Pendelungen erfolgen, wie sich zeigt, mit der „Langmuirfrequenz“. Für eine vorgegebene Entladungsstrecke lassen sich dann der elektrische Widerstand und damit die „Anfachbereiche“ bestimmen, wobei sich herausstellt, dass die Frequenzen, bei denen Anfachung auftritt, im allgemeinen *nicht* mit der Langmuirfrequenz identisch sind.

Das Ergebnis der Rechnungen hängt sehr von der Art der gewählten Randbedingungen der Entladungsstrecke ab, die man nicht sehr genau kennt. Da in der Hauptsache gezeigt werden soll, dass die Frequenz der sich anregenden Schwingungen eben nicht gerade die Langmuirfrequenz sein muss, wird ein bestimmtes Beispiel mit einer einfachen Randbedingung betrachtet.

Das physikalische Bild der Erscheinungen wird durch das Zusammenwirken zweier Effekte bestimmt: Die „Laufzeiterscheinungen“ der Gesamtheit der strömenden Elektronen auf ihrem Weg durch das Plasma und die Pendelungen um ihre mittlere Fortpflanzungsgeschwindigkeit, die für das einzelne Elektron mit der „Langmuirfrequenz“ vor sich gehen.

2. Die „klassische“ Behandlung der freien Plasmaschwingungen.

Die auf LANGMUIR und TONKS¹⁾ zurückgehende und in der Folge von weiteren Autoren übernommene theoretische Behandlung der freien Schwingungen eines Plasmas bedient sich der folgenden Betrachtungsweise:

Gegeben sei ein homogenes Plasma mit den elektrischen Ladungsdichten p (positiv) und n (negativ) in Coulomb/cm³; im ungestörten Plasma ist $p_0 = n_0$, das Plasma somit feldfrei. Denkt man sich die positive Ladung festgehalten und die negative Ladung um die Strecke $\delta\vec{s}$ aus der ursprünglichen Ruhelage verschoben, so entsteht ein negativer Ladungsüberschuss δn , der in der Form

$$\delta n = -n_0 \operatorname{div} \delta\vec{s} \quad (I)$$

angesetzt wird. Wir schreiben δn und $\delta\vec{s}$ (häufig wird n und \vec{s} verwendet), um anzudeuten, dass (I) nur Geltung besitzt für *kleine*

Verrückungen und die dadurch bedingten Ladungsänderungen. Man erkennt dies, wenn man sich (I) beispielsweise aus der Kontinuitätsgleichung herleitet:

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \operatorname{div} n \vec{v} = 0. \quad (1)$$

Durch Multiplikation mit dt und Benutzung von $\vec{v} = d\vec{s}/dt$ folgt

$$\frac{\partial n}{\partial t} dt + \operatorname{div} n \frac{d\vec{s}}{dt} dt = 0 \quad (2)$$

oder

$$dn + \operatorname{div} (n d\vec{s}) = 0. \quad (3)$$

Mit $n = n_0 + \delta n$ und Vernachlässigung von Gliedern 2. Ordnung folgt

$$\delta n + n_0 \operatorname{div} \delta \vec{s} = 0 \quad (4)$$

das ist die Grundgleichung (I). Wir halten also fest, dass (I) nur für kleine Verrückungen und Dichteänderungen gültig ist.

Im folgenden wollen wir von der Betrachtungsweise Gebrauch machen, die man in der Hydrodynamik als „Lagrangesche“ bezeichnet. Die Verrückung $\delta \vec{s}$ mit den Komponenten ξ, η, ζ wird als Funktion der Ortskoordinaten x, y, z , und der Zeit t dargestellt; x, y, z sind dabei die Koordinaten des Punktes, an dem sich ein Teilchen ursprünglich, d. h. vor der Verrückung befunden hat. Die momentane Lage eines Teilchens nach seiner Verrückung sei durch die Koordination X, Y, Z bestimmt, wobei

$$X = x + \xi$$

$$Y = y + \eta$$

$$Z = z + \zeta$$

ist.

Betrachten wir der Einfachheit halber vorübergehend eine Verrückung nur in der X -Richtung, so verlangt die Kontinuitätsbedingung, dass die gleiche Ladungsmenge, welche ursprünglich zwischen den Ebenen x und $x + dx$ eingeschlossen war (Fig. 1), nach der Verrückung zwischen den Ebenen $x + \xi$ und $x + dx + \xi + d\xi$ oder $x + \xi + \left(1 + \frac{\partial \xi}{\partial x}\right) dx$ eingeschlossen ist. Es gilt daher

$$n \left(1 + \frac{\partial \xi}{\partial x}\right) dx = n_0 dx$$

oder

$$\delta n = n - n_0 = -n_0 \frac{\frac{\partial \xi}{\partial x}}{1 + \frac{\partial \xi}{\partial x}}.$$

δn bezieht sich dabei auf die Stelle X nach der Verrückung. Wenn wir ξ und damit auch $\partial \xi / \partial x$ und δn als *kleine* Grössen ansehen, so gilt unter Vernachlässigung von Gliedern 2. Ordnung

$$\delta n = -n_0 \frac{\partial \xi}{\partial x}.$$

Mit Erweiterung auf den dreidimensionalen Fall folgt Gleichung (I), die unter der Voraussetzung kleiner Verrückungen demnach in der Form

$$\delta n(X, Y, Z) = -n_0 \left(\frac{\partial \xi}{\partial x} + \frac{\partial \eta}{\partial y} + \frac{\partial \zeta}{\partial z} \right) = -n_0 \operatorname{div} \delta \vec{s} \quad (6)$$

auch in der Lagrangeschen Betrachtungsweise gültig bleibt, wobei nun x, y, z die ursprünglichen Koordinaten eines Teilchens vor seiner Verrückung bedeuten.

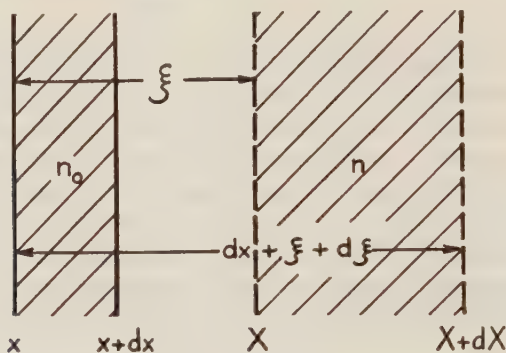


Fig. 1.

Verschiebung der negativen Ladungsdichte n_0 .

Eine weitere Grundgleichung verknüpft das durch die Raumladung δn entstehende elektrische Feld $\delta \vec{E}$ mit der Ladungsdichte; im praktischen Maßsystem gilt (mit $\epsilon_0 = 0,886 \cdot 10^{-13}$)

$$\epsilon_0 \operatorname{div} \delta \vec{E} = -\delta n \quad (II)$$

woraus mit (6) folgt

$$\epsilon_0 \operatorname{div} \delta \vec{E} = n_0 \operatorname{div} \delta \vec{s}$$

oder

$$\delta \vec{E} = \frac{n_0}{\epsilon_0} \delta \vec{s} + \operatorname{rot} \vec{A} + \text{const.} \quad (7)$$

Solange magnetische Wirkungen ausser acht bleiben, was hier geschehen soll, kann der rot-Anteil von $\delta \vec{E}$ gleich Null gesetzt werden. Die Konstante verschwindet zufolge der Bedingung $\delta \vec{E} = 0$ für $\delta \vec{s} = 0$. Folglich gilt

$$\delta \vec{E} = \frac{n_0}{\epsilon_0} \delta \vec{s}. \quad (8)$$

Gleichung (8) liefert die elektrische Feldstärke an jeder Stelle des Plasmas als Funktion von x, y, z .

Zur Beschreibung der Bewegung der negativen Raumladung gegenüber der als fest gedachten positiven Ladung betrachten wir ein bestimmtes Volumenelement oder, was auf das gleiche hinauskommt, ein bestimmtes Teilchen, das sich ursprünglich am Ort x, y, z befand. Für dessen Verschiebung gilt dann

$$m \frac{\partial^2 \delta \vec{s}}{\partial t^2} = -e \delta \vec{E}. \quad (\text{III})$$

Ein Vorzug der Lagrangeschen Betrachtungsweise besteht darin, dass auf der linken Seite von (III) die *partielle* Ableitung nach der Zeit steht. (Bei der „Eulerschen“ Betrachtungsweise, wo die Grössen Funktionen der *augenblicklichen* Lagekoordinaten sind, wäre hier die totale Ableitung $d^2 \vec{s} / dt^2 = d^2 \vec{r} / dt^2$ zu schreiben.) Mit (8) folgt aus (III)

$$m \frac{\partial^2 \delta \vec{s}}{\partial t^2} = -\frac{e n_0}{\epsilon_0} \delta \vec{s} \quad (9)$$

oder mit Einführung der „Langmuirfrequenz“

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{e n_0}{m \epsilon_0}} \quad (10)$$

die Schwingungsgleichung

$$\frac{\partial^2 \delta \vec{s}}{\partial t^2} + \omega_0^2 \delta \vec{s} = 0. \quad (\text{IV})$$

Die Integration von (IV) liefert unmittelbar

$$\delta \vec{s} = (\delta \vec{s})_0 e^{i \omega_0 t}. \quad (\text{V})$$

Jedes Volumenelement bzw. Teilchen, das zur Zeit $t = 0$ die vorgegebene Verrückung $(\delta \vec{s})_0$ erhalten hat, schwingt also mit der gleichen Frequenz ω_0 um seine Ruhelage. Alle Teilchen schwingen unabhängig voneinander nach Massgabe der zur Zeit $t = 0$ aufgeprägten Verrückung $\delta \vec{s}_0(x, y, z)$.

Es handelt sich dabei um *freie* Schwingungen, wie etwa die eines Systems von elastisch an ihre Ruhelage gebundenen Massenpunkten. Die Energie der Schwingungen entstammt der Arbeit, die bei der Vornahme der anfänglichen Verrückungen zur Zeit $t = 0$ aufgewendet wurde. Durch Energieverluste verschiedener Art werden solche Schwingungen nach einer gewissen Zeit wieder abgeklungen sein. Die Frequenz *dieser* Schwingungen ist die „Langmuirfrequenz“.

Nimmt man an, dass etwa durch statistische Schwankungen Störungen des Plasmagleichgewichtes und damit kleine Verrückungen auftreten, so kann im Frequenzintervall Δf günstigstenfalls Schwingungsenergie von der Grössenordnung $kT \cdot \Delta f$ abgegeben werden. Eine messbare Abgabe von hochfrequenter Energie nach aussen ist durch den betrachteten Schwingungsmechanismus jedenfalls nicht möglich.

3. Berücksichtigung des Elektronendrucks.

Die Tatsache, dass die einzelnen Volumenelemente des Plasmas unabhängig voneinander schwingen sollten, erscheint vom physikalischen Standpunkt aus etwas unbefriedigend. Wie E. G. LINDER²⁾ zeigte, tritt eine Kopplung der schwingenden Teilchen untereinander auf, wenn der Elektronendruck berücksichtigt wird. Besitzen die Elektronen eine Maxwell'sche Geschwindigkeitsverteilung, so kann man sie als ein Gas betrachten, das der allgemeinen Zustandsgleichung in der Form

$$p_e = n \kappa T \quad (11)$$

genügt. Die Kraftdichte auf ein Volumenelement ist gegeben durch

$$\vec{K} = - \text{grad } p_e = - \text{grad } n \kappa T. \quad (12)$$

Mit $n = n_0 + \delta n$ und (I) folgt die Kraftdichte bei Vernachlässigung von Gliedern 2. Ordnung zu

$$\begin{aligned} \vec{K} &= - \text{grad } \kappa T (n_0 - n_0 \text{div } \delta \vec{s}) \\ &= \kappa n_0 T \text{grad div } \delta \vec{s}. \end{aligned} \quad (13)$$

Die Bewegungsgleichung (III) mit Berücksichtigung des Elektronendrucks, bezogen auf ein *einzelnes* Teilchen, lautet dann

$$m \frac{\partial^2 \delta \vec{s}}{\partial t^2} = - e \delta \vec{E} + \kappa T \text{grad div } \delta \vec{s} \quad (14)$$

oder unter Einführung von (8) und (10)

$$\frac{\partial^2 \delta \vec{s}}{\partial t^2} + \omega_0^2 \delta \vec{s} = \frac{\kappa T}{m} \text{grad div } \delta \vec{s}. \quad (\text{VI})$$

Für das *ebene* Problem erhält man aus (VI) mit $\delta \vec{s} = \xi(x, t)$

$$\frac{\partial^2 \xi}{\partial t^2} + \omega_0^2 \xi = \frac{\kappa T}{m} \frac{\partial^2 \xi}{\partial x^2}. \quad (15)$$

Diese Gleichung findet sich bei LINDER. Als Lösung ergeben sich nach rechts oder links fortschreitende Wellen im Plasma von der Form

$$\xi = \xi_0 e^{j(\omega t \pm kx)}. \quad (16)$$

Durch Einführung des Elektronendrucks lässt sich also eine Kopplung der schwingenden Teilchen untereinander erklären. Aus (15) erhält man mit Einsetzen von (16)

$$-\omega^2 + \omega_0^2 = -\frac{\kappa T}{m} k^2 \quad (17)$$

oder

$$\omega^2 = \omega_0^2 + \frac{\kappa T}{m} k^2. \quad (18)$$

Die Langmuirfrequenz ω_0 tritt hier als unterste Grenzfrequenz der fortschreitenden Wellen (für $k = 2\pi/\lambda = 0$ oder $\lambda = \infty$) auf. An (18) lassen sich die bekannten Betrachtungen über die Phasen- und Gruppengeschwindigkeit der fortschreitenden Wellen anschliessen. Man erhält z. B.

$$v_{gr.} \cdot v_{ph.} = \frac{\omega}{k} \frac{d\omega}{dk} = \frac{d\omega^2}{dk^2} = \frac{\kappa T}{m} \approx v_{thermisch}^2.$$

Die kritische Betrachtung der in Abschnitt 2 und 3 zugrundegelegten Voraussetzungen zeigt, dass hier nur *freie* Schwingungszustände des Plasmas beschrieben werden, die durch anfänglich vorgegebene Verrückungen der negativen Teilchen aus der quasineutralen Verteilung heraus angeregt werden. Betrachtet werden dabei nur *kleine* Verschiebungen, d. h. kleine Schwingungsamplituden der um eine feste Ruhelage schwingenden Teilchen. Ein stationärer Konvektionsstrom ist demnach nicht vorhanden, da ein solcher eine endliche Verschiebung der Teilchen aus ihrer Ruhelage mit sich brächte. Schwingungszustände der geschilderten Art werden nach kurzer Zeit durch verschiedene Energieverluste abgeklungen sein.

4. Theorie der Plasmaschwingungen bei endlicher Verschiebung der Ladungsträger.

Das Problem der *Erzeugung* von Schwingungen mit Hilfe eines Plasmas lässt sich durch Betrachtungen der vorausgehenden Art nicht erfassen. Dazu ist vielmehr eine Untersuchung erforderlich, unter welchen Umständen ein Plasma fähig ist, Wechselstromenergie dauernd nach aussen abzugeben. Aus energetischen Gründen muss diese Energie aus einer andern Energieform bezogen werden können; es liegt nahe, dafür die Gleichstromenergie eines

durch das Plasma hindurch bewegten Konvektionsstromes heranzuziehen. Dabei muss aber von einer Betrachtungsweise Gebrauch gemacht werden, bei der sich die Teilchen durch das Plasma hindurchbewegen und nicht nur kleine Verschiebungen um eine feste Ruhelage ausführen. Die Verhältnisse liegen ähnlich wie in der Kontinuumsmechanik: Die „klassischen“ Betrachtungen zur Plasmatheorie entsprechen den Verhältnissen in der Elastizitätstheorie, wo ebenfalls kleine Verrückungen aus der Ruhelage betrachtet werden. Die erweiterte Plasmatheorie muss der hydrodynamischen Betrachtungsweise entsprechen, bei der die Teilchen endliche Bewegungen durch die Flüssigkeit hindurch ausführen. Hierbei kann Gleichung (I) keine Verwendung finden.

Wir bedienen uns hier zum Unterschied gegenüber der vorangehenden Art der Betrachtung der nach EULER benannten Methode, bei der alle abhängigen Veränderlichen als Funktionen der *augenblicklichen* Ortskoordinaten, die wir x, y, z nennen, auftreten.

Die Kontinuitätsgleichung für die positiven und negativen Ladungsträger in der Form

$$\frac{\partial p}{\partial t} + \operatorname{div} (p \vec{v}_p) = 0 \quad (19)$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \operatorname{div} (n \vec{v}_n) = 0 \quad (20)$$

besitzt allgemeine Geltung bei beliebiger Verschiebung der Ladungsträger, da hier die Verhältnisse an einem festen Ort betrachtet werden. Voraussetzung für (19) und (20) ist, dass die Geschwindigkeit \vec{v} eine eindeutige Ortsfunktion ist; an einem Ort dürfen daher nur Teilchen einerlei Geschwindigkeit vorhanden sein. Rückläufige Bewegungen, die *gleichzeitig* zu einer fortschreitenden Bewegung am selben Ort hinzutreten, sind also auszuschliessen.

Die positive Dichte betrachten wir, wie üblich, wieder als ruhend ($\vec{v}_p = 0$) gegenüber den negativen Trägern, was bei der grossen Masse der positiven Ionen im Vergleich zur Elektronenmasse mit genügender Annäherung erlaubt ist. Aus (19) folgt damit die zeitliche Konstanz von p :

$$p = p_0(x, y, z). \quad (21)$$

Die Raumladungsgleichung lautet

$$\epsilon_0 \operatorname{div} \vec{E} = p_0 - n. \quad (22)$$

Aus (20) folgt, wenn man n aus (22) einführt

$$-\varepsilon_0 \operatorname{div} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \operatorname{div} (n \vec{v}_n) = 0 \quad (23)$$

oder

$$\varepsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} - n \vec{v}_n = \vec{F}(t) + \operatorname{rot} \vec{A}(t). \quad (24)$$

Der rot-Anteil wird wie oben vernachlässigt, da wir keine Wirbelfelder betrachten wollen. Die Funktion $\vec{F}(t)$ stellt, wie man aus (24) unmittelbar erkennt, den totalen äusseren Strom dar, wir bezeichnen ihn daher im folgenden mit $\vec{J}(t)$. Er ist gleich der Summe aus dem Konvektionsstrom $-n \vec{v}_n$ (das Minuszeichen rührt daher, dass wir durch (20) die positive Stromrichtung mit der \vec{v}_n -Richtung identifizierten, ein in der \vec{v}_n -Richtung fliessender Elektronenstrom liefert daher einen negativ zu zählenden äusseren Strom \vec{J}) und dem Verschiebungsstrom $\varepsilon_0 \partial \vec{E} / \partial t$. Wir schreiben also (24)

$$\varepsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} - n \vec{v}_n = \vec{J}(t). \quad (25)$$

Für die Bewegungsgleichung eines bestimmten Teilchens schreiben wir

$$m \frac{d^2 \vec{s}}{dt^2} = m \frac{d \vec{v}_n}{dt} = -e \vec{E}. \quad (26)$$

Durch nochmalige Differentiation nach der Zeit t folgt

$$m \frac{d^2 \vec{v}_n}{dt^2} = -e \frac{d \vec{E}}{dt} = -e \left[\left(\frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \right) + (\vec{v}_n \operatorname{grad}) \vec{E} \right]. \quad (27)$$

Mit Einführung von (25) erhält man

$$m \frac{d^2 \vec{v}_n}{dt^2} = -e \left[\frac{1}{\varepsilon_0} \vec{J}(t) + \frac{n}{\varepsilon_0} \vec{v}_n + (\vec{v}_n \operatorname{grad}) \vec{E} \right]$$

und mit Einführung von n aus (22)

$$m \frac{d^2 \vec{v}_n}{dt^2} = -e \left[\frac{1}{\varepsilon_0} \vec{J}(t) + \frac{p_0}{\varepsilon_0} \vec{v}_n - \vec{v}_n \operatorname{div} \vec{E} + (\vec{v}_n \operatorname{grad}) \vec{E} \right]$$

oder

$$\frac{d^2 \vec{v}_n}{dt^2} + \omega_0^2 \vec{v}_n = -\frac{e}{m \varepsilon_0} \vec{J}(t) + \frac{e}{m} \vec{v}_n \operatorname{div} \vec{E} - \frac{e}{m} (\vec{v}_n \operatorname{grad}) \vec{E}, \quad (28)$$

wobei

$$\omega_0^2 = \frac{e p_0}{m \varepsilon_0}. \quad (28a)$$

5. Das ebene Problem bei konstanter positiver Dichte.

Eine einfache Lösung von (28) ergibt sich für das ebene Problem (Ortsabhängigkeit z. B. nur in der x -Richtung), wenn man noch die positive Raumladung als räumliche Konstante über das ganze Plasma ansieht. Unter diesen Voraussetzungen ist

- a) p_0 eine Konstante;
- b) $\vec{J}(t) = J_x(t) = J(t);$
- c) $\vec{v}_n \operatorname{div} \vec{E} = v_x \frac{\partial E_x}{\partial x} = (\vec{v}_n \operatorname{grad}) \vec{E}$

womit sich (28) mit $\vec{v}_n = v_x = v$ reduziert auf

$$\frac{d^2 v}{dt^2} + \omega_0^2 v = \frac{e}{m \varepsilon_0} J(t), \quad (29)$$

wenn wir noch das Vorzeichen von $J(t)$ umkehren, d. h. den Strom positiv *gegen* die Elektronenströmung zählen. Eine analoge Herleitung von (29) im Fall des ebenen Problems findet sich bei SEELIGER⁵⁾. Gleichung (29) liefert die Geschwindigkeit eines bestimmten Teilchens in Abhängigkeit von der Zeit t , wenn wir dasselbe auf seiner Bahn verfolgen; sie hat die typische Form einer Schwingungsgleichung.

Für den einfachsten Fall eines zeitlich konstanten äusseren Stromes J_0 lautet die Lösung von (29)

$$v = A \sin \omega_0 t + B \cos \omega_0 t + \frac{J_0}{p_0}. \quad (30)$$

Die Integrationskonstanten A und B sind dabei noch Funktionen eines Parameters, der die Anfangsbedingungen kennzeichnet, unter denen das betrachtete Teilchen zu einem bestimmten Zeitpunkt gestartet ist. Je nach der Art des zu behandelnden Problems besitzt der Parameter verschiedene Bedeutungen.

Betrachten wir beispielsweise den Fall, dass zur Zeit $t = 0$ an allen Punkten x_0 des Plasmas die Werte der Geschwindigkeit $v = V(x_0)$ und Beschleunigung $\dot{v} = \dot{V}(x_0)$ vorgegeben sind, so erhält man als Lösung von (29)

$$v(x_0, t) = \frac{\dot{V}(x_0)}{\omega_0} \sin \omega_0 t + V(x_0) \cos \omega_0 t + \frac{J_0}{p_0} (1 - \cos \omega_0 t). \quad (31)$$

(31) beschreibt die Bewegung eines Teilchens, das zur Zeit $t = 0$ vom Ort x_0 aus mit vorgegebener Geschwindigkeit $V(x_0)$ und Beschleunigung $\dot{V}(x_0)$ startet. Der Parameter besitzt hier die Dimension einer Länge (x_0).

Verschwindet der äussere Strom J , so schwingen die Elektronen mit der Langmuirfrequenz ω_0 um ihre Ruhelage; dies führt wieder auf das Ergebnis von Abschnitt 2. Bei endlichem äusserem Strom bewegen sich die Elektronen durch das Plasma hindurch, wobei sie Pendelungen um die mittlere Fortpflanzungsgeschwindigkeit mit der Frequenz ω_0 ausführen können. Diese Pendelfrequenz ω_0 hat den Wert der „Langmuirfrequenz“ (10) bzw. (28a). Die räumliche Periode, auf die eine solche Pendelung der Geschwindigkeit um die mittlere Geschwindigkeit \bar{v} entfällt, ist

$$\lambda = \frac{2\pi}{\omega_0} \bar{v} = \frac{v}{c} \lambda_0$$

wenn λ_0 die „Langmuirwellenlänge“ und c die Lichtgeschwindigkeit bedeuten.

Eine andere Problemstellung ist z. B. die, dass an einer festen Stelle $x = x_0$ Elektronen mit einer vorgegebenen Geschwindigkeit in das Plasma eintreten. Die Geschwindigkeit sei dabei eine Funktion der Startzeit $t = t_0$ an der Eintrittsstelle x_0 . In diesem Fall besitzt der Parameter die Dimension einer Zeit (t_0). Für $t = t_0$ sei $v = V(t_0)$ und $\dot{v} = \dot{V}(t_0)$ bekannt. Als Lösung folgt dann

$$v(t_0, t) = \frac{\dot{V}(t_0)}{\omega_0} \sin \omega_0(t - t_0) + V(t_0) \cos \omega_0(t - t_0) + \frac{J_0}{p_0} (1 - \cos \omega_0(t - t_0)). \quad (32)$$

(32) beschreibt die Bewegung eines Teilchens, das zur Zeit $t = t_0$ an der Stelle x_0 gestartet ist, auf seiner Bahn. Den zurückgelegten Weg erhält man aus

$$x(t_0, t) - x_0 = \int_{t_0}^t v dt. \quad (33)$$

Von dieser Art der Problemstellung werden wir anschliessend Gebrauch machen. (Abschnitt 6.)

Gleichung (29) zeigt, dass bei allen Problemen, die mit der *Erzeugung* von Plasmaschwingungen zusammenhängen, die Einführung eines äusseren Stromes $J(t)$ notwendig ist. Erst damit erscheint auf der rechten Seite von (29) das „Störungsglied“ $\frac{e}{m \epsilon_0} J(t)$, aus welchem die Schwingung ihre nach aussen abzugebende Energie beziehen kann. Der Strom $J(t)$ kann in der Form

$$J(t) = J_0 + \hat{J} e^{j\eta t} \quad (34)$$

angesetzt werden, d. h. mit einem Gleichstromanteil J_0 , dem ein Wechselstromanteil \hat{J} mit der Kreisfrequenz η überlagert ist.

Schwingungsenergie kann nach aussen abgegeben werden, wenn der äussere Plasmawiderstand $\hat{\mathfrak{R}} = \hat{U}/\hat{J}$ (\hat{U} sei der an der Entladungsstrecke auftretende Wechselspannungsanteil) negative Werte annimmt. Es zeigt sich in der Tat, dass für gewisse Frequenzbereiche η bei vorgegebenem ω_0 negative Widerstände auftreten. In solchen Bereichen von η , die also keineswegs mit der „Langmuirfrequenz“ ω_0 zusammenfallen müssen, ist das Plasma zur *Anfachung* hochfrequenter Schwingungen fähig.

Zum Fall des ebenen Problems seien noch zwei Bemerkungen angefügt: a) Denken wir uns die positive Raumladung p_0 entfernt und dafür senkrecht zur Elektronenströmung ein homogenes Magnetfeld mit der Induktion $\vec{B} = B_z = B$ wirksam, so lautet (26)

$$m \frac{d^2 \vec{s}}{dt^2} = -e \vec{E} - e [\vec{v} \vec{B}]$$

oder in Koordinaten

$$\begin{aligned} m \ddot{x} &= -e E_x - e B \dot{y} \\ m \ddot{y} &= e B \dot{x}. \end{aligned}$$

Für die Bewegung in der x -Richtung folgt mit $\dot{x} = v_x$ hieraus

$$m \ddot{v}_x + \frac{e^2}{m} B^2 v_x = -e \dot{E}_x$$

und analog der Rechnung zu (29)

$$\ddot{v}_x + \frac{e^2}{m^2} B^2 v_x = \frac{e}{m \epsilon_0} J(t). \quad (35)$$

Ein Vergleich mit (29) zeigt, dass ein homogenes Magnetfeld B in bezug auf die Bewegung der Elektronen in der x -Richtung (und nur darauf!) den nämlichen Einfluss ausübt, wie eine homogene positive Raumladung p_0 , wenn die Beziehung besteht

$$\frac{p_0}{\epsilon_0} = \frac{e}{m} B^2. \quad (36)$$

Auf eine solche Äquivalenz zwischen Magnetfeld und Raumladung wurde bereits durch J. MÜLLER⁶⁾ hingewiesen.

b) Aus (29) folgt bei konstantem äusserem Strom J eine besonders einfache Lösung für v , nämlich $v = \text{constans}$, wenn

$$\omega_0^2 v = \frac{e}{m \epsilon_0} J_0$$

oder mit (28a) $J_0 = p_0 v$, d. h. $n = n_0 = p_0$ ist. Das bedeutet, dass ein mit der Geschwindigkeit $v = J_0/p_0$ bzw. der Dichte $n = J_0/v$ in das Plasma eintretender Elektronenstrom sich *ohne* Pendelungen gleichmässig durch das Plasma hindurch bewegt; physikalisch ist

dies leicht einzusehen, da in diesem Fall das elektrische Feld und damit die Raumladungskräfte verschwinden. ($n = p_0$.)

Für die Betrachtung im äquivalenten Magnetfeld folgt analog, dass für einen äusseren Strom

$$J_0 = \frac{e}{m} \varepsilon_0 B^2 v_x \quad (37)$$

die Bewegung der Elektronen in der x -Richtung unter Beibehaltung der konstanten Eintrittsgeschwindigkeit v_x vor sich geht. Da das elektrische Feld hier keineswegs Null ist, verschwinden die Raumladungskräfte nicht, wohl aber werden sie durch die Kraftwirkung des Magnetfeldes in der x -Richtung gerade kompensiert.

Im Falle $p_0 = n_0$ ist die Spannung an der Entladungsstrecke wegen des Verschwindens der elektrischen Feldstärke im Plasma Null; im äquivalenten Fall des Magnetfeldes ist jedoch eine solche Spannung vorhanden, welche gerade die zusätzliche Energie der Elektronen deckt, die sie bei der Bewegung durch die Entladungsstrecke in der y -Richtung erhalten.

6. Bestimmung der Anfachbereiche von Schwingungen für ein einfaches Beispiel.

Aus einem homogenen Plasma denken wir uns eine Entladungsstrecke von der Länge d abgegrenzt (Fig. 2), die von einem zeitlich konstanten Strom J_0 durchflossen wird, dem eine kleine Wechsel-

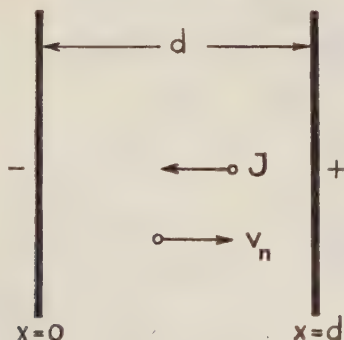


Fig. 2.

Ebene Entladungsstrecke.

spannungskomponente mit der Kreisfrequenz η überlagert ist (34). Gesucht sind die Frequenzbereiche η , in denen der ohmsche Anteil des äusseren Widerstandes der Entladungsstrecke negative Werte annimmt. Wir wählen eine einfache Grenzbedingung an der Stelle $x_0 = 0$, nämlich $v_0 = 0$ und $E_0 = 0$, d. h. verschwindende Eintrittsgeschwindigkeit und Feldstärke an einer „virtuellen“ Kathode bei

$x = 0$. Wie erwähnt, hängt das Ergebnis von der Wahl der Anfangsbedingungen bei $x = 0$ merklich ab; es kommt uns aber hier nicht darauf an, irgendein experimentell realisiertes, aber kompliziertes Beispiel durchzurechnen, sondern darauf, an einem möglichst einfachen Beispiel zu zeigen, wie solche Anfachbereiche überhaupt liegen und dass sie eben *nicht* mit der Langmuirfrequenz zusammenfallen müssen.

Die Wiedergabe der Rechnung können wir uns ersparen, da der Fall einer ebenen Elektronenströmung im Magnetfeld in andern Zusammenhang in einer Untersuchung von J. MÜLLER⁶⁾ bereits behandelt ist, der wegen der Äquivalenz von Magnetfeld und positiver Raumladung unserm Beispiel analog ist. Wir können daher von dort den Wert des ohmschen Widerstandes übernehmen; er folgt zu*)

$$R = \frac{eJ_0}{m\epsilon_0} \tau_m^4 \cdot \frac{1}{2\alpha\beta} \left[\frac{1 - \cos(\alpha - \beta)}{(\alpha - \beta)^2} - \frac{1 - \cos(\alpha + \beta)}{(\alpha + \beta)^2} \right] \text{ Ohm.} \quad (38)$$

Dabei bedeuten:

τ_m = mittlere Laufzeit eines Elektrons für die Entladungsstrecke der Länge d .

$\alpha = \eta \tau_m$

$\beta = \omega_0 \tau_m$.

(38) gibt den Wert von R in erster Näherung für *kleine* Schwankungen des Stromes J . Wir interessieren uns hier für die relative

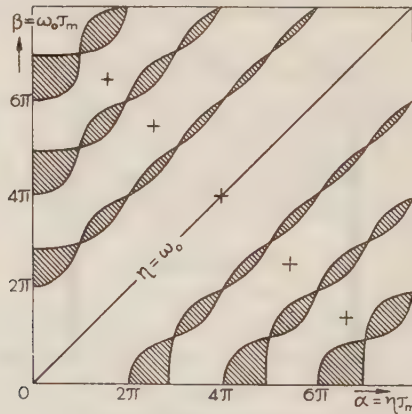


Fig. 3.

Beispiel für die Lage von Anfachbereichen bei Plasmaschwingungen. In den schraffierten Bereichen besitzt der ohmsche Widerstand der Entladungsstrecke für kleine aufgeprägte Wechselspannungen der Frequenz η negative Werte (Anfachbereiche), auf den Kurvenzügen den Wert Null und ausserhalb positive Werte. (ω_0 = Langmuirfrequenz, τ_m = Elektronenlaufzeit durch die Entladungsstrecke.)

*) Gleichung (46a).

Lage der Frequenzbereiche η , in denen R negative Werte annimmt, zur Langmuirfrequenz ω_0 . Wir zeichnen daher zweckmässig in der (η, ω_0) -Ebene die Kurven auf, auf denen $R = 0$ wird, was in Fig. 3 geschehen ist*). Im (schraffierten) Inneren der „Zöpfe“ nimmt, wie man aus (38) feststellt, R negative Werte an, auf den Kurven geht R durch Null und nimmt sonst überall positive Werte an.

Man sieht, dass gerade in der Umgebung der Langmuirfrequenz ($\eta = \omega_0$) keine Anfachung möglich ist, wohl aber in Bereichen $\eta \lesssim \omega_0$, wobei es zu jedem ω_0 ein ganzes Spektrum von Anfachbereichen gibt. Wie aus (38) hervorgeht, nehmen die negativen Werte für R bei festem ω_0 und damit die Möglichkeit einer Anfachung schnell mit wachsendem η ab. Wir schliessen damit die Diskussion des gewählten Beispiels ab und wollen nochmals folgendes festhalten:

Der nach aussen wirksame Wechselstromwiderstand einer Entladungsstrecke in einem Plasma, dessen konstante positive Ladungsdichte als ruhend und von den Elektronen durchströmt betrachtet wird, nimmt für gewisse Frequenzbereiche η einer aufgedrückten kleinen Wechselspannung negative Werte an; in solchen Bereichen kann das Plasma nach aussen hochfrequente Energie abgeben. Diese Bereiche fallen aber nicht notwendigerweise in die unmittelbare Umgebung der „Langmuirfrequenz“. Das physikalische Bild der Erscheinungen ergibt sich aus dem Zusammenwirken der die Langmuirfrequenz bestimmenden Raumladungskräfte mit den Laufzeiterscheinungen der Elektronenströmung in der Entladungsstrecke.

Literatur.

- 1) L. TONKS und I. LANGMUIR, Oscillations in ionized Gases, Phys. Rev. **33**, 189 (1929).
- 2) E. G. LINDER, Effect of electron pressure on plasma electron oscillations, Phys. Rev. **49**, 645 und 753 (1936).
- 3) R. ROMPE und M. STEENBECK, Der Plasmazustand der Gase. Erg. d. exact. Naturwiss. **18**, 300ff. (1939).
- 4) R. SEELIGER und M. STEENBECK, Bemerkung über den Elektronendruck in der Theorie der Plasmaschwingungen. Z. f. Phys. **113**, 526 (1939).
- 5) R. SEELIGER, Zur Theorie der Elektronen-Plasmaschwingungen. Z. f. Phys. **118**, 618 (1942).
- 6) J. MÜLLER, Untersuchungen über Elektronenströmungen. Hochfr. Technik und Elektroak. **46**, 145 (1935).

*) Vgl. dazu B. MROWKA, Jahrb. d. A.E.G.-Forschung **6**, 111 (1939).

Vereinfachter Funkenzähler

von H. Greinacher, Bern.

(27. X. 1946.)

Im folgenden sei ein Zählgerät für Elementarstrahlen beschrieben, das gegenüber dem seinerzeit beschriebenen¹⁾ eine wesentliche Vereinfachung aufweist. Der Hochspannungsgleichrichter fällt nämlich weg. Wie sich gezeigt hat²⁾, erhält man eine zuverlässige Zählwirkung, wenn man als Funkenstrecke zwei gleiche Pt-Kügelchen in passendem Abstand wählt. Da hier die Anordnung im Gegensatz zu allen andern Zählapparaten (Spitzenzähler, Zählrohr) symmetrisch in bezug auf die Elektroden ist, spielt die Polarität der angelegten Spannung keine Rolle. Der Funkenzähler kann somit auch mit *Wechselspannung* betrieben werden. Es findet dann zwar nur

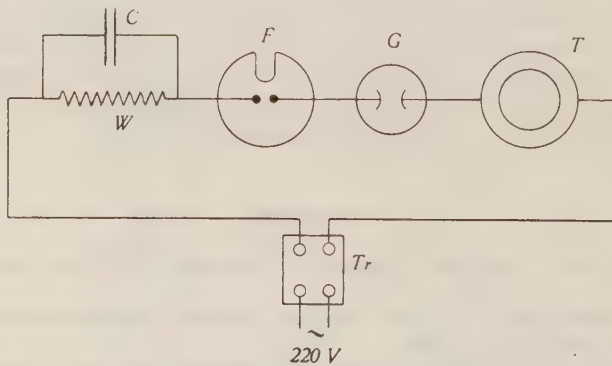


Fig. 1.

in dem Zeitintervall einer Wechselstromperiode Zählung statt, wo die Spannung oberhalb des Funkenpotentials liegt. Aber bei der Verwendung des Gerätes als Demonstrationsapparat spielt dies praktisch keine Rolle. Die Anordnung des neuen Funkenzählermodells reduziert sich daher auf die in Fig. 1 angegebene. Der Kleintransformator Tr 220/2200 V ist geschlossen über einen Widerstand $W = 5 \cdot 10^5 \Omega$ mit parallelgeschaltetem Kondensator

¹⁾ H. GREINACHER, H. P. A. **9**, 590 (1936); Zs. f. techn. Phys. **19**, 132 (1938).

²⁾ Siehe auch P. FREY, H. P. A. **19**, 41 (1946).

$C = 100$ cm, über die Funkenstrecke I' und die beiden Indikatoren $G =$ Signalglimmlämpchen und $T =$ Hochohmtelephon. Die Funkenstrecke ist in ein Glaskölbchen eingeschmolzen, dem gerade soviel Luft entzogen ist, dass die Funkenstrecke gute Zählwirkung zeigt. Das Einschliessen der Funkenstrecke bezweckt die Unabhängigkeit von Luftdruck- und Temperaturschwankungen und namentlich den Ausschluss von Staub. Die Pt-Kügelchen sind im Sauerstoffgebläse durch Schmelzen der Drahtenden ($\Phi = 0,6$ mm) erzeugt. Nach Einschmelzen in das Glaskügelchen glüht man sie zwecks Reinigung der Oberflächen am besten noch aus. Dies geschieht durch kurzzeitiges Anlegen der Funkenstrecke an die Spannung eines Induktors. Um den Zähler auch für α -Teilchen verwenden zu können, ist noch ein Glasröhrchen eingesetzt, das vor der Funkenstrecke genügend dünn ausgezogen ist.

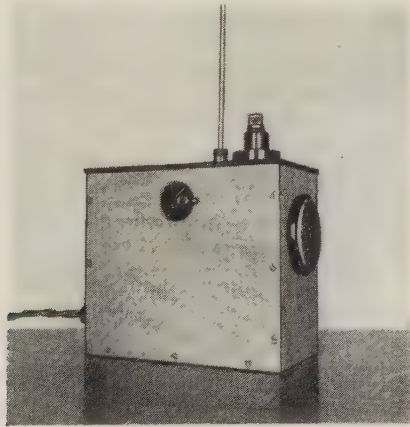


Fig. 2.

Der fertige kompensiöse Apparat ist in Fig. 2 abgebildet. Vorn befindet sich der Zählkopf, der durch ein Schiefefenster abgedeckt oder freigelegt werden kann. Rechts befindet sich das Telephon. Oben ist das Glimmlämpchen aufgesteckt. Nach Herausnahme desselben können an die beiden Anschlussbuchsen auch andere Registrierapparate (Galvanometer usw.) angeschlossen werden. In eine zwischen I' und G angebrachte Buchse ist ein Draht (40 cm) aufgesteckt, der als Antenne dient, wenn man die Zählfunken auf einen Radioapparat übertragen will. Da hier im Gegensatz zum Spitzenzähler und Zählrohr die Entladungsstösse ziemlich intensiv sind, erfolgt die radiotelegraphische Übermittlung auf grössere Distanzen. Befand sich z. B. der Apparat am einen Ende des Physi-

kalischen Institutes, so ergab der Radio im Auditorium am entgegengesetzten Ende noch sehr laute Registrierknalle.

Das Knacken im Telephon *T* selbst ist zwar gut hörbar, doch schwach. Das Lämpchen *G* leuchtet indessen voll auf. Das Licht ist genügend stark, um damit eine photographische Registrierung auszuführen. Bringt man das Lämpchen unter Zwischenschaltung eines Lichtspaltes direkt vor einen vorbeibewegten Film, so erhält man Aufnahmen, wie sie in Fig. 3 wiedergegeben sind. Man erzielt auch bei rascher Funkenfolge eine gute Registrierung. Dass die Intensität der einzelnen Entladungen infolge der Verschiedenheit der Spannung variiert, stört nicht weiter. Es sei bemerkt, dass die

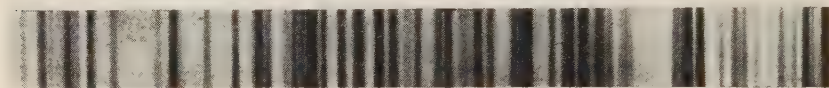


Fig. 3.

Registrierung von β -Strahlen während ca. $\frac{1}{4}$ Minute durch photographische Aufzeichnung der Lichtblitze eines in den Funkenkreis eingeschalteten Glimmlämpchens.

Registrierintensität für alle Strahlenarten (α -, β -, γ -Strahlen) gleich ausfiel. Wurde das Glimmlämpchen durch ein empfindliches Galvanometer ersetzt, so konnte die Veränderlichkeit der Funkenintensität auch direkt beobachtet werden. Zugleich konnte man feststellen, dass im Mittel etwa gleichviel Entladungen in der einen und andern Richtung übergingen. Wurde das Lämpchen durch ein Galvanometer ersetzt oder gar kurzgeschlossen, so war die Zahl der Registrierfunken merklich grösser. Das Lämpchen verbraucht infolge seines kapazitiven Widerstandes einen Teil der Transformatorspannung, so dass in diesem Fall die an der Funkenstrecke liegende Wechselspannung etwas kleiner ist als ohne Lämpchen. Dieses leuchtet auch infolge der an ihm liegenden Teilspannung dauernd schwach auf und zeigt so an, wenn der Apparat unter Spannung steht. Der Hauptvorteil des Wechselspannungsbetriebes ist aber neben dem Wegfall der Gleichrichterkomplikation der Umstand, dass der Apparat sofort nach Anschalten ans Netz gebrauchsbereit ist und nach Abschalten auch sofort wieder in spannungslosem Zustand sich befindet.

Physikalisches Institut der Universität Bern.

Einkristalle von Barium-Titanverbindungen

von H. Blattner, B. Matthias und W. Merz

(17. I. 1947.)

Im Laufe der beiden letzten Jahre wurde Bariumtitanat, welches durch Zusammensintern von BaO und TiO_2 gewonnen wurde, von einigen Autoren¹⁾ auf seine Dielektrizitätskonstante hin untersucht und DEBYE-SCHERRER-Aufnahmen am polykristallinen Material gemacht²⁾. Es wurde die Auffassung vertreten, dass man, ähnlich

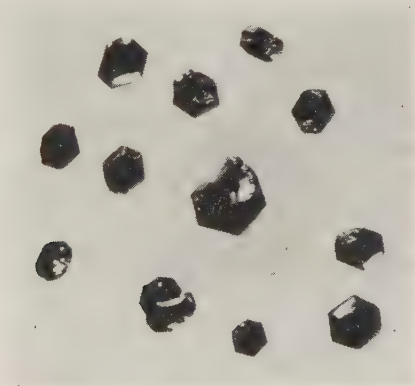


Abbildung 1.

den Tartraten und Phosphaten, eine neue Gruppe von ferroelektrischen Kristallen bestimmt habe. Da es aber nur möglich ist, aus den dielektrischen Messungen an Einkristallen diese Vermutung zu prüfen, versuchten wir, solche herzustellen.

¹⁾ WUL, Nature **156**, 480 (1945); Nature **157**, 808 (1946). – RUSHMAN und STRIVENS, Faraday Trans. 1946.

²⁾ MEGAW, Nature **155**, 484 (1945); Faraday Trans. 1946; Proceedings Phys. Soc. **58**, 133 (1946).

Durch Zusammensintern ist es kaum möglich, messbare Einkristalle zu erhalten. Um sie aus ihrer eigenen Schmelze zu züchten, müsste man bei so hohen Temperaturen arbeiten, die nur noch schlecht konstant zu halten sind. Deshalb wurde die zu kristallisierende Verbindung in einer bei tieferen Temperaturen schmelzenden Substanz gelöst. Nach einigen Versuchen zeigte sich dafür ein äquivalentes Gemisch von Kalium- und Natriumkarbonat als am besten geeignet, da dieses bereits etwas oberhalb 700°C zu schmelzen beginnt. BaO und TiO_2 wurden im stöchiometrischen Verhältnis mit einer genügenden Menge Alkalikarbonat in einem

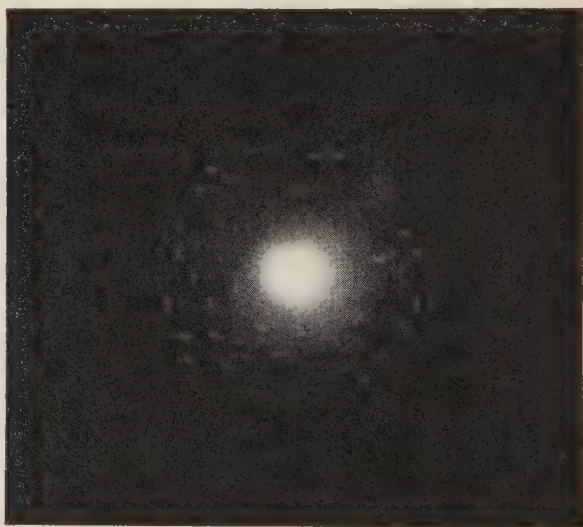


Abbildung 2.

Platintiegel auf etwa 1000°C erhitzt. Nachdem sich in der Schmelze BaO und TiO_2 vollständig gelöst hatten, wurde die Temperatur allmählich abgesenkt¹⁾. Auf diese Weise erhielten wir schwarze Kristalle von ca. 2 mm Grösse, die einen sechszähligen Habitus zeigten (Bild 1). Über ihr dielektrisches Verhalten soll später berichtet werden.

BOURGEAIS²⁾ berichtete seinerzeit über ein Bariumtitanat von der von ihm vermuteten Zusammensetzung $\text{Ba}_2\text{Ti}_3\text{O}_8$, welches er als pseudokubisch in bezug auf sein optisches Verhalten beschrieb.

¹⁾ Die Apparatur wurde von W. GÜNTHERT gebaut.

²⁾ BOURGEOIS, Zschr. f. Krist. **14**, 280.

Wir versuchten nun, BaCO_3 und TiO_2 in geschmolzenem BaCl_2 zu lösen und in der oben beschriebenen Weise daraus Bariumtitanat auskristallisieren zu lassen. Die so erhaltenen Kristalle waren von den oben beschriebenen schwarzen, sechszähligen völlig verschieden, indem sie einen ausgesprochen kubischen Habitus zeigten.

Vorläufige Untersuchungen lassen nun vermuten, dass die schwarzen 6-eckigen Kristalle zur Klasse der Halbleiter gehören. Die mehrfach wiederholte chemische Analyse deutet darauf, dass die stöchiometrische Bruttoformel dieser Kristalle BaTiO_3 ist. Da nun auch die LAUE-Aufnahme (Bild 2) eine sechszählige Symmetrie zeigt und die Pulveraufnahme sich hexagonal indizieren lässt, liegt die Vermutung nahe, dass man die zum Ilmenit, Magnesium- und Mangan titanat isomorphe Bariumverbindung habe.

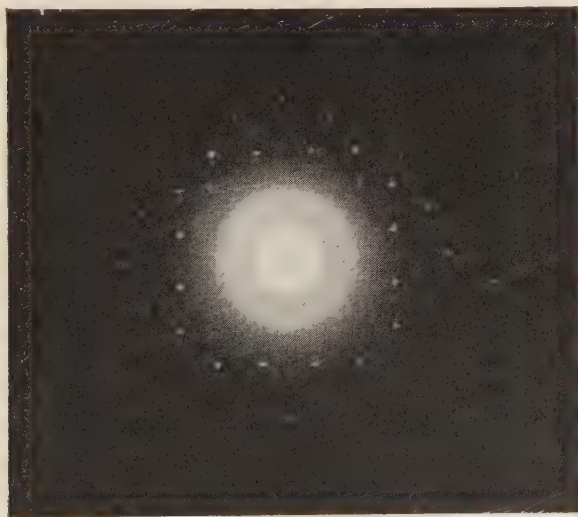


Abbildung 3.

Die aus geschmolzenem BaCl_2 erhaltenen, scheinbar kubischen Kristalle zeigen nun, wie erwartet, unter dem Polarisationsmikroskop ein vom kubischen System abweichendes Verhalten, indem man zwischen gekreuzten Nicols ein dunkles Achsenkreuz beobachten kann, wie es ähnlich auch bei tetragonalen Kristallen in Richtung der optischen Achse der Fall ist. Eine LAUE-Aufnahme (Bild 3) zeigt ebenfalls vierzählige Symmetrie. Die chemische Analyse, die allerdings wegen der Kleinheit der Kristalle noch nicht sehr exakt

ist, gibt in Übereinstimmung mit BOURGEOIS¹⁾ einen grösseren Titangehalt, als er der Formel BaTiO_3 nach zu erwarten wäre. Diese pseudokubische Modifikation zeigt ein äusserst interessantes dielektrisches und piezoelektrisches Verhalten²⁾. Ausführlichere Messungen sind im Gange.

Zürich, Physikalisches Institut an der ETH.

¹⁾ BOURGEOIS, Zeitschr. f. Krist. **14**, 280.

²⁾ BLATTNER, MATTHIAS, MERZ, SCHERRER, Experienta **3** (1947) Aprilheft.

Bericht über die Tagung der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft

in Langenthal, am 3. Mai 1947.

Präsident: Prof. Dr. G. WENTZEL (Zürich)

Vizepräsident: Prof. Dr. E. MIESCHER (Basel)

Sekretär ad. int.: Priv.-Doz. Dr. H. WÄFFLER (Zürich).

Geschäftlicher Teil.

Als ordentliche Mitglieder der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft wurden aufgenommen:

HH. Prof. L. ALLEGRETTI (Bari, Italien); J. BACHER (Binningen); G. BENDIT (Courgenay); Dr. W. GRAFFUNDER (Fribourg); J. F. HAMOUDA (Zürich); Dr. R. JOST (Zürich); R. KLÄUI (Zürich); W. MOOR (Fribourg); Prof. G. POLVANI (Mailand, Italien); O. PROBST (Fribourg); A. TRÖSCH (Bern); R. WIDERÖE (Zürich); S. YOUNIS (Zürich);

und als Kollektiv-Mitglied: Metallwerke A.-G. Dornach.

Der Jahresbericht, die Jahresrechnung und der Revisorenbericht werden verlesen und genehmigt.

Der von Herrn Prof. FIERZ (Basel) erstattete Bericht der Redaktionskommission der Helvetica Physica Acta wird verlesen und unter bester Verdankung genehmigt.

Die Versammlung wählt als neuen Vorstand:

Präsident: Prof. Dr. E. MIESCHER (Basel)

Vizepräsident: Prof. Dr. H. MÜGELI (Neuchâtel)

Sekretär: Priv.-Doz. Dr. G. BUSCH (Zürich)

Vertreter der Redaktionskommission der H. P. A.: Prof. Dr. M. FIERZ (Basel)

Delegierter der S. P. G. im Senat der Schweizerischen Naturforschenden Gesellschaft: Prof. Dr. H. KÖNIG (Bern)

Stellvertreter: Prof. Dr. A. PERRIER (Lausanne).

Die nächste Sitzung wird im Rahmen der 127. Jahresversammlung der Schweizerischen Naturforschenden Gesellschaft in Genf (30. August—1. September) stattfinden.

Wissenschaftlicher Teil.

Zur photographischen Intensitätsbestimmung mit dem Impulsspektrographen

von D. MAEDER (ETH. Zürich), P. HUBER und A. STEBLER (Basel).

Der Impulsspektrograph misst die Amplitudenverteilung der Impulse bei der Untersuchung von Kernreaktionen mit Ionisationskammer und Proportionalverstärker. Für jeden Impuls erscheint auf dem Schirm einer Braunschen Röhre kurzzeitig eine horizontale Linie in einer der Impulsamplitude (bzw. Partikelenergie E) entsprechenden Höhe. In Fig. 1a ist das Aussehen des Oszillographen-

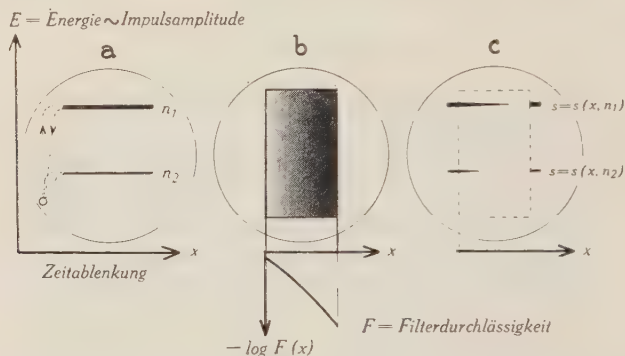


Fig. 1.

- a) Weg des Kathodenstrahls.
- b) Lage des Filters.
- c) Plattenschwärzung bei Aufnahme einzelner Linien.

schirms beim Eintreffen von Impulsen zweier verschiedener Amplituden dargestellt; die einzelnen Belichtungen werden durch eine photographische Platte summiert, so dass die Stosszahldichte

$$n = n(E) = \text{Stosszahl pro mm in } E\text{-Richtung}$$

durch eine entsprechende Schwärzung wiedergegeben wird. Da die Zerlegung nach Impulshöhen kontinuierlich ist, werden die Messergebnisse durch keine willkürliche Klasseneinteilung beeinflusst.

In der kürzlich erschienenen Beschreibung der Apparatur¹⁾ wurde die quantitative Bestimmung von n kurz angedeutet. Im folgenden möchten wir auf die hierfür entwickelte photographische Technik näher eingehen.

Die Plattenbelichtung wird in x -Richtung gesetzmässig variiert durch ein vor dem Oszillographenschirm befestigtes Graufilter

¹⁾ D. MAEDER, H. P. A. 20, 139 (1947).

(Fig. 1b), dessen Durchlässigkeit F annähernd exponentiell von x , aber möglichst wenig von E abhängt. Damit wird für jeden Energiewert die Plattenschwärzung s eine Funktion von x , mit n als Parameter (Fig. 1c). Vom Standpunkt eines allgemeinen Schwärzungsgesetzes aus wären noch die weiteren Parameter

t = Belichtungsdauer pro Stoss,

T = mittlere Pausenlänge zwischen aufeinanderfolgenden Belichtungen derselben Plattenstelle (z. B. innerhalb 1 mm in E -Richtung),

ΔT = mittlere Schwankung von T

massgebend. Da im vorliegenden Falle jedoch $t = \text{konst.}$, und da sowohl T als auch ΔT für eine gegebene Betriebsdauer nur von n abhängen, so umfasst der reduzierte Ansatz

$$s = s(x; n) \quad (1)$$

formal alle die — im einzelnen nicht näher bekannten — Abweichungen vom photographischen Reziprozitätsgesetz, die Auswirkungen des Intermittenzeffektes, sowie auch die Ermüdungs- und Nachleuchteffekte des Leuchtschirms.

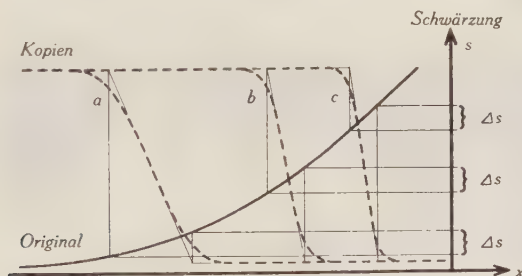


Fig. 2.

Kopierprozess.

Kopierbelichtung: a) 250; b) 1000; c) 4000 luxsec.

Die Auswertung der Aufnahmen erfolgt durch Aufsuchen einer bestimmten Standardschwärzung s_0 zu jedem Energiewert. Aus (1) folgt

$$n = f_0(x) \quad \text{für} \quad s = s_0 = \text{konst.} \quad (2)$$

Bezeichnet $x = x_0(E)$ die Kurve, längs welcher die Schwärzung s_0 vorhanden ist, so ergibt sich durch einfaches Einsetzen in (2) die gesuchte Intensitätsverteilung

$$n = f_0[x_0(E)] = n(E). \quad (3)$$

Das Aufsuchen der Kurven konstanter Schwärzung wird durch einen geeigneten Kopierprozess selbsttätig ausgeführt. Die Platten-

schwärzung als Funktion von x möge etwa wie die ausgezogene Kurve in Fig. 2 verlaufen. Bei Verwendung eines harten Kopiermaterials, welches innerhalb einer Belichtungsänderung um einen Faktor 2 praktisch von weiss nach schwarz umschlägt, verläuft die Schwärzung der Kopien gemäss einer der gestrichelten Kurven a, b, c, je nach der Dauer der Kopierbelichtung. Wählt man diese derart, dass an der gleichen Stelle x_0 , an welcher das Original die Standardschwärzung s_0 besitzt, auch in der Kopie die Schwärzung s_0 erscheint, so sind für jedes Spektrogramm die Kurven $x=x_0(E)$ im Original, in der 1. und eventuellen Kopien höherer Ordnung kongruent. Da sich das Übergangsgebiet zwischen schwarz und weiss bei je-

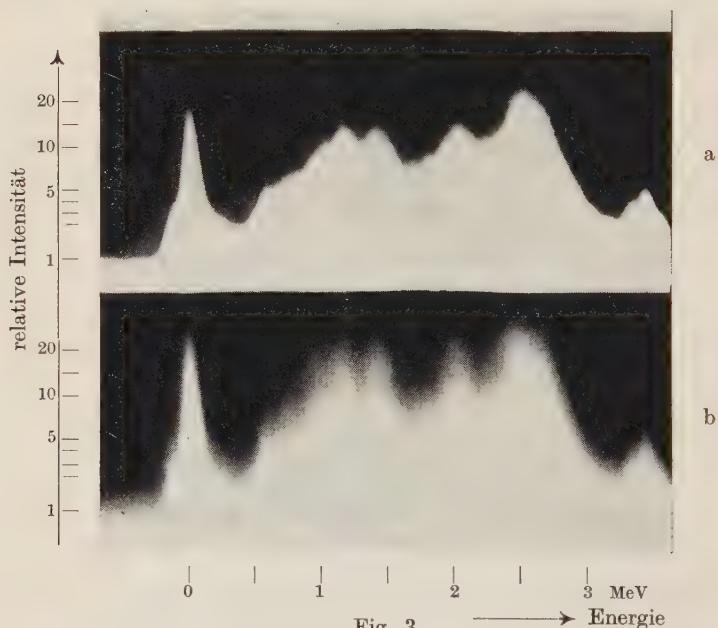


Fig. 3.

Stickstoffreaktionen mit Neutronen von kontinuierlich verteilter Energie.

a = 2. Kopie¹⁾; b = Original.

dem derartigen Kopierprozess weiter einengt, so lässt sich aus einer Kopie genügend hoher Ordnung die gesuchte Kurve mit einer Schärfe ablesen, die alle übrigen Messfehler unterschreitet. Die selbstverständliche Forderung, einen möglichst steilen Teil der Schwärzungskurve des Originals zu benützen, wird durch zweckmässige Wahl der Standardschwärzung (etwa $s_0 = 1$) erfüllt. Dann

¹⁾ Zur Erleichterung des Vergleiches wurde die 2. Kopie hergestellt, die aber mit gleichbleibender Gradation erfolgte.

erstreckt sich das Übergangsgebiet schon auf der 1. Kopie nur noch über eine Breite Δx , die einer Änderung der Filterdurchlässigkeit um etwa 10% entspricht.

Als Beispiel zeigt Fig. 3a die Kopie einer Aufnahme der Stickstoffreaktionen mit Neutronen von kontinuierlich verteilter Energie. Fig. 3b ist eine möglichst naturgetreue Wiedergabe der Originalaufnahme.

Bei einem Verfahren, das in einem einzigen Arbeitsgang das ganze Spektrum auswertet, kann die photographische Regel, nur Schwärzungen an benachbarten Plattenstellen miteinander zu vergleichen, naturgemäss nicht erfüllt werden. Die Zuverlässigkeit der Ergebnisse hängt daher wesentlich von der Homogenität der photographischen Schicht und ihrer Entwicklung ab. Um zufällige Beeinflussungen des Entwicklungsprozesses möglichst auszuschliessen, wurde eine Entwicklungsmaschine gebaut, welche die Entwicklerflüssigkeit mittels einer Walze gleichmässig über der Platte hin und her bewegt (Fig. 4). Um eine direkte Berührung zwischen Walze und Schicht zu vermeiden, legt man über die Plattenränder eine Zelluloidmaske, deren Ausschnitt in jeder Richtung mindestens 2 cm grösser ist als die Spektrogramme.

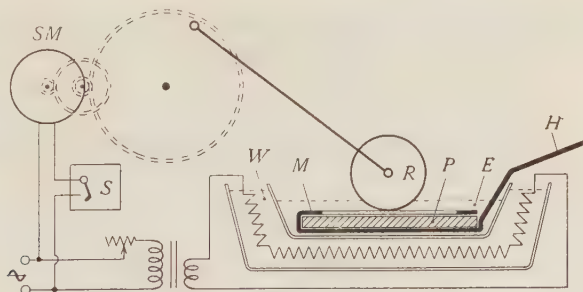


Fig. 4.

Schematische Darstellung der Entwicklungsmaschine.

- | | |
|---------------------------------|----------------------------------|
| P = Photographische Platte. | E = Entwicklerflüssigkeit. |
| M = Maske (0,3 mm Zelluloid). | W = Wasserbad mit Heizspirale. |
| H = Handgriff. | SM = Synchronmotor. |
| R = Porzellanrolle. | S = Schaltuhr mit Starttaste. |

Zur Kontrolle der Homogenität und Reproduzierbarkeit wurde eine Anzahl Platten durch einen Graukeil hindurch mit einer Lampe verschieden lange belichtet. Die entstehenden s_0 -Kurven waren gut reproduzierbar, bei genauem Konstanthalten der Entwicklungsbedingungen auch in bezug auf absolute Intensitäten. Aus einer derartigen Kurvenschar lassen sich z. B. unbekannte Belichtungszeiten auf etwa 10% genau interpolieren. Für das im Impulsspektro-

graphen eingebaute Graufilter haben wir eine analoge Kurvenschar durch gleichmässige Ausleuchtung des Oszillographenschirms mittels zweier Kippgeräte hergestellt. Bei der Interpolation unbekannter Impulszahllichten mittels dieser Kurven heben sich systematische Fehler des Filters, des Leuchtschirms und der Optik heraus. Den Intensitätsparameter zu diesen Kurven haben wir nachträglich unter Einhaltung der bezüglich T und ΔT gültigen Nebenbedingungen (siehe oben) experimentell festgelegt.

Dank der besprochenen Standardisierung der photographischen Prozesse lassen sich aus den Impulsspektrogrammen absolute Intensitäten direkt ablesen. Eine einfache Kontrolle ergibt sich aus der Gesamtzahl aller Impulse, die wir jeweils mit einem Zählwerk feststellen.

Travail d'ionisation, effets de recombinaison et pouvoir d'arrêt de quelques gaz pour les particules α

par L. DICK, P. FALK-VAIRANT et J. ROSSEL (E.P.F. Zurich).

Ce travail va paraître prochainement in extenso dans H. P. A.

Die Bestimmung der Ionisierungsarbeit an Stickstoff und Luft mit Po- α -Teilchen

von F. ALDER, P. HUBER und F. METZGER (Basel).

Die Bestimmung der Energietönung einer Kernreaktion erfordert die Kenntnis der Ionisierungsarbeit des verwendeten Gases, sofern nicht ein α -Strahler bekannter Energie als Vergleichsstandard benutzt wird. Die bis heute bekannten Ionisierungsarbeiten beschränken sich auf eine relativ kleine Zahl von Gasen, und die Übereinstimmung der Ergebnisse ist z. T. noch unbefriedigend.

Wir haben versucht, mit Hilfe von Po- α -Teilchen eine genaue Bestimmung der Ionisierungsarbeit an Stickstoff und Luft, unter Verwendung einer Ionisationskammer mit linearem Verstärker, durchzuführen. Den Sättigungseigenschaften wurde spezielle Aufmerksamkeit geschenkt. Wir brachten auf die eine Kammerelektrode so viel Polonium, dass im nutzbaren Kammervolumen die Intensität etwa 20 Teilchen pro Minute betrug. Die Analyse der Sättigungskurve nach JAFFÉ¹⁾ ergab bei einem Druck von 4,5 ata Stickstoff und einer Kammeranspannung von 10 kV (Plattendistanz 1 cm) ein Sättigungsdefizit von 3,5⁰/₁₀₀. Bringt man bei der gemessenen Ladung diese Korrektur an, so erhält man mit dem Wert

¹⁾ G. JAFFÉ, Ann. d. Phys. **42**, 303 (1913).

5,303 MeV für die Energie der Po- α -Teilchen¹⁾ als Ionisierungsarbeit an Stickstoff

$$J_{N_2} = 36,3 \pm 0,4 \text{ eV.}$$

Nach der gleichen Methode ergab sich für Luft von 4,5 ata

$$J_{\text{Luft}} = 34,7 \pm 0,5 \text{ eV.}$$

Oft ist es wünschenswert, an Stelle von Polonium Uran als Standard zu benutzen. Wir verglichen daher die bei Sättigung auftretenden Impulse der α -Teilchen von Polonium mit denjenigen von U_{234} und U_{238} . Hierzu verwendeten wir eine mit Uran und Polonium versehene Elektrode, welche die drei α -Gruppen in ungefähr gleicher Intensität lieferte (Fig.).



Ausschnitt aus einem Registrierfilm.

Unter der Annahme, dass die Ionisierungsarbeit für alle drei α -Energien gleich gross sei, fanden wir:

$$E_{U_{234}} = 4,78 \pm 0,03 \text{ MeV,}$$

$$E_{U_{238}} = 4,18 \pm 0,03 \text{ MeV.}$$

Ein Vergleich mit den Ergebnissen bisheriger Messungen^{2), 3), 4)} zeigt, dass, wenn eine Änderung der Ionisierungsarbeit zwischen 4,2 und 5,3 MeV vorhanden ist, diese kleiner als 2% sein muss.

¹⁾ W. Y. CHANG, Phys. Rev. **69**, 60 (1946).

²⁾ W. M. RAYTON und T. R. WILKINS, Phys. Rev. **51**, 818 (1937).

³⁾ G. J. SIZOO und S. A. WYTZES, Physica **4**, 791 (1937).

⁴⁾ J. SCHINTLMEISTER und K. LINTNER, Sitzb. Akad. Wiss. Wien, Abt. IIa, **148**, 279 (1939).

Untersuchung der (n, α) -Reaktion an Chlor mit Hilfe einer heizbaren Ionisationskammer

von F. METZGER, P. HUBER und F. ALDER (Basel).

Energietönungen und Wirkungsquerschnitte von Kernprozessen mit langsamen und schnellen Neutronen lassen sich mit Hilfe von Ionisationskammer und linearem Verstärker für solche Substanzen bestimmen, welche bei Betriebstemperatur einen Dampfdruck von einigen Atmosphären aufweisen. Da bisher immer bei Zimmertemperatur gearbeitet wurde, war die Zahl der geeigneten Verbindungen gering. Es schien uns deshalb wünschenswert, durch Steigerung der Kammertemperatur (bis ca. 300° C) die Zahl der einer Untersuchung zugänglichen Elemente zu vermehren.

Die der Verwirklichung einer heizbaren Ionisationskammer entgegenstehenden Isolations- und Dichtungsschwierigkeiten wurden durch Verwendung von Keramik-Chromstahl-Durchführungen, welche die Firma Sécheron¹⁾ für ihre pumpenlosen Gleichrichter entwickelt hat, gelöst. Diese Durchführungen halten einen Überdruck von 10 at aus; sie haben sich auch bei wiederholtem Aufheizen sehr gut bewährt. Kontrollmessungen mit der Reaktion $N^{14}(n, \alpha)B^{11}$ zeigten, dass die Kammer, abgesehen von einer etwas grösseren Erschütterungsempfindlichkeit, einer gewöhnlichen Ionisationskammer ebenbürtig ist.

Da viele der leichtflüchtigen Verbindungen Halogenide sind, begannen wir unsere Untersuchungen mit Tetrachlorkohlenstoff. Durch Extrapolation²⁾ einer bei 1 ata aufgenommenen Sättigungskurve (Plattenabstand 1 cm) bestimmten wir zunächst die von einzelnen $U^{234}\text{-}\alpha$ -Teilchen ($E_\alpha = 4,78$ MeV) in CCl_4 freigemachte Ladung und erhielten daraus für die Ionisierungsarbeit von CCl_4 den Wert

$$\underline{J_{CCl_4} = 26,8 \pm 1,0 \text{ eV.}}$$

Die bei Bestrahlung von 4 ata CCl_4 ($T \sim 130^\circ \text{ C}$) mit D-D-Neutronen aufgenommene Impulsverteilung war der von GIBERT, ROGGEN und ROSSEL³⁾ angegebenen ähnlich. Durch Verkleinern des Druckes auf 0,5 ata gelang es, eine α -Gruppe zu isolieren (siehe Figur) und die zugehörige Reaktionsenergie zu bestimmen. Nehmen wir Unabhängigkeit der Ionisierungsarbeit zwischen 4,8 und 3 MeV

¹⁾ Vgl. Bull. Sécheron Nr. 12, 1940. Der Firma Sécheron danken wir für die Überlassung von zwei Durchführungen.

²⁾ Nach G. JAFFÉ, Ann. d. Phys. **42**, 303 (1913).

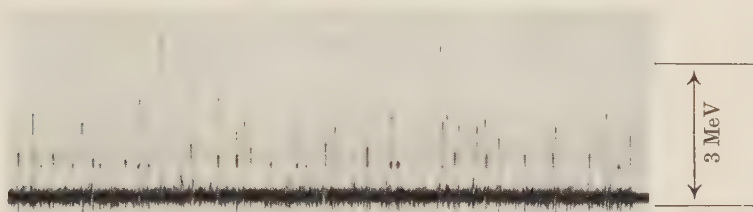
³⁾ A. GIBERT, F. ROGGEN, J. ROSSEL, H. P. A. **17**, 97 (1944).

an, so folgt als Reaktionsenergie bei Bestrahlung mit D-D-Neutronen ($E_n = 2,98$ MeV).

$$E_R = 3,42 \pm 0,20 \text{ MeV}$$

und damit für die Energietönung des entsprechenden (n, α) -Prozesses

$$Q = 0,44 \pm 0,20 \text{ MeV.}$$



Ausschnitt aus einem Registrierfilm. Die grossen Impulse entsprechen der Reaktion $\text{Cl}^{35}(n, \alpha) \text{P}^{32}$.

Bei Bestrahlung von Cl mit Neutronen einer Ra-Be-Quelle haben HUBER, LIENHARD und WÄFFLER¹⁾ eine 14,7 sec-Aktivität gefunden, die mit D-D-Neutronen von 2,87 MeV nicht angeregt wird²⁾. BLEULER und ZÜNTI³⁾ ordneten diese Aktivität ($12,40 \pm 0,12$ sec) dem P^{34} zu. Dies bedeutet, dass die Reaktion $\text{Cl}^{37}(n, \alpha) \text{P}^{34}$ mit D-D-Neutronen nicht auftritt. Eigene Aktivitätsmessungen führten zum gleichen Ergebnis. Die Energietönung $Q = 0,44$ MeV muss daher dem Prozess $\text{Cl}^{35}(n, \alpha) \text{P}^{32}$ zugeordnet werden. Betrachtet man die Massenwerte von P^{32} und Cl^{35} des Isotopenberichts 1942⁴⁾ als richtig, so ergibt sich ein Q von $-1,1$ MeV, und es müsste sich demnach bei der von uns gefundenen α -Gruppe um einen Übergang in einen angeregten Zustand von P^{32} handeln.

Den Wirkungsquerschnitt des Übergangs bestimmten wir durch Vergleich mit der von Baldinger und Huber⁵⁾ untersuchten Reaktion $\text{N}^{14}(n, \alpha) \text{B}^{11}$ ($\sigma = 16 \cdot 10^{-26} \text{ cm}^2$) zu

$$\sigma = 1,7 \cdot 10^{-26} \text{ cm}^2 \quad (E_n = 2,98 \text{ MeV}).$$

Dieser Wert ist auf einen Faktor 2 genau.

1) O. HUBER, O. LIENHARD, H. WÄFFLER, H. P. A. **15**, 314 (1942).

2) A. GIBERT u. a. loc. cit., Seite 100.

3) E. BLEULER, W. ZÜNTI, H. P. A. **19**, 137 (1946).

4) S. FLÜGGE, I. MATTAUCH, Phys. Zs. **44**, 181 (1943).

5) E. BALDINGER, P. HUBER, H. P. A. **12**, 330 (1939).

Über das Auflösungsvermögen selbstlöschender Zählrohre bei hohen Stosszahlen

von E. BALDINGER und P. HUBER (Basel).

Erscheint demnächst in den HPA.

Das 7 Sekunden Isomer des Au¹⁹⁷

von H. FRAUENFELDER, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER und R. STEFFEN (ETH, Zürich).

Durch Anregung mit Röntgenstrahlen stellte WIEDENBECK¹⁾ einen isomeren Zustand des einzigen stabilen Goldisotops Au¹⁹⁷ mit einer Halbwertszeit von 7,5 sec. fest und bestimmte die Energie der beim Übergang in den Grundzustand emittierten Konversions-elektronen durch Absorptionsmessungen zu ca. 0,25 MeV.

In Übereinstimmung mit WIEDENBECK erhielten wir für die Halbwertszeit des durch Bestrahlung von Gold mit Be + D-Neutronen angeregten Isomers $7,4 \pm 0,3$ sec. Die Absorptionskurve der Konversionselektronen des Au^{197*} in Aluminium zeigt das Auftreten zweier Elektronenlinien von 0,07 MeV und 0,25 MeV. Aus β - β -Koinzidenzmessungen folgt, dass sie in Kaskade emittiert werden. Die Absorptionskurve wurde bestimmt, indem für verschiedene Al-Absorber das Verhältnis der Stosszahlen zweier Zählrohre gemessen wurde, wobei das eine Zählrohr die Intensität mit Absorber, das andere diejenige ohne Absorber registrierte.

Wir vermuteten, dass der metastabile Zustand des Au^{197*} durch den Zerfall eines der instabilen Nachbarisobare Hg¹⁹⁷ oder Pt¹⁹⁷ entstehen könnte. Daher untersuchten wir den Zerfall des durch Protonenbestrahlung von Gold im Cyclotron hergestellten Hg¹⁹⁷. Da Gold ein Reinelement ist, entsteht durch den (p, n)-Prozess nur das Hg¹⁹⁷, das zwei isomere Zustände besitzt, die mit einer Halbwertszeit von 25 h und 65 h zerfallen (FRIEDLÄNDER und Wu²⁾).

Beide Isomere zerfallen ohne genetischen Zusammenhang durch K-Einfang in Au¹⁹⁷.

Der K-Einfang mit der Halbwertszeit 65 h führt auf ein Niveau des Au¹⁹⁷ von 0,077 MeV, welches durch Emission einer in der L-, M- und N-Schale konvertierten Gammastrahlung in den Grundzustand übergeht.

Der 25 h K-Einfang hingegen geht über ein Niveau des Au¹⁹⁷-Kerns mit einer Anregungsenergie von 0,300 MeV. Eine Kaskade zweier konvertierter Gammalinien von 0,135 MeV und 0,165 MeV führt in den Grundzustand. Aus der Beta-Gamma-Koinzidenzrate

¹⁾ M. L. WIEDENBECK, Phys. Rev. **68**, 1 (1945).

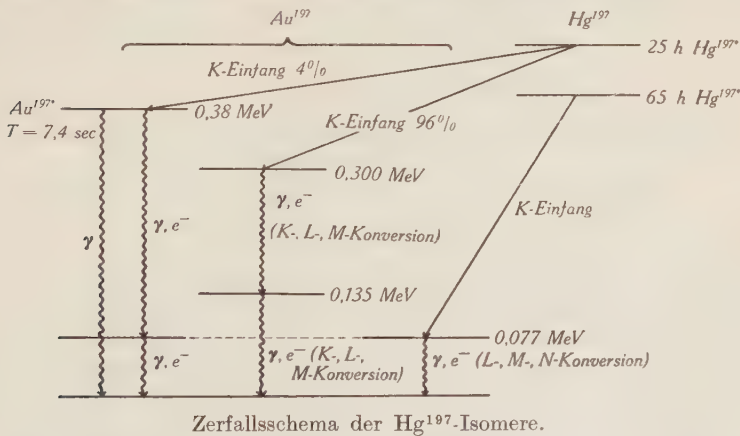
²⁾ G. FRIEDLÄNDER und C. S. WU, Phys. Rev. **63**, 227 (1943).

folgt, dass das 0,300 MeV-Niveau eine Lebensdauer unter 10^{-7} sec. besitzen muss. Ausserdem wurde eine sehr schwache Gammastrahlung von 0,38 MeV durch eine γ -Absorptionsmessung in Pb festgestellt.

Es schien deshalb, als ob ein Übergang der Hg^{197} Isomere in das 7 sec.-Niveau nicht oder nur zu einem kleinen Teil erfolgt. Versuche, das eventuell entstehende Au^{197*} chemisch abzutrennen und nachzuweisen, misslingen, da die chemische Abtrennung für die uns zur Verfügung stehende Präparatstärke zu viel Zeit beanspruchte.

Die Feststellung, dass ca. 4% der Zerfallsprozesse der 25 h Periode auf das 7 sec.-Niveau des Au^{197} führen, gelang durch die folgende physikalische Trennmethode: Beim Erhitzen auf ca. 800° C verdampft das Hg^{197} und die in unwägbaren Mengen vorliegende Tochtersubstanz Au^{197*} bleibt zurück. Diese Methode gestattete, das mit dem Hg^{197} im Gleichgewicht sich befindende Au^{197*} in 5 sec. abzutrennen und die Halbwertszeit des so erhaltenen Au^{197*} zu $7,4 \pm 0,2$ sec. zu bestimmen. Die Absorptionskurve der Au^{197*} -Strahlung wurde auf die gleiche Weise und mit übereinstimmendem Resultat wie bei der n - n -Anregung gemessen.

Damit ergibt sich zusammenfassend folgendes Zerfallsschema:



Die schwache 0,38 MeV γ -Strahlung wurde vorläufig lediglich aus energetischen Gründen dem direkten Übergang des 7 sec-Isomers in den Grundzustand zugeordnet. Weitere Messungen sollen entscheiden, ob diese γ -Strahlung tatsächlich beim Zerfall des Isomers emittiert wird.

Das Zerfallsschema der Hg^{197} -Isomere zeigt deutlich, dass von den vielen Anregungsniveaux der schweren Kerne bei einem speziellen Zerfall nur einige wenige angeregt werden.

Das 53-Minuten-Isotop des Elements 43

VON P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK UND R. STEFFEN
(ETH. Zürich).

Bei der Bestrahlung von Molybdän mit Protonen entsteht u. a. ein radioaktives Isotop des Elements 43, welches sich unter Positronenemission und durch K-Einfang mit einer Halbwertszeit von 53 Minuten umwandelt¹⁾. Die Zerfallsenergie, aus der oberen Grenze des Positronenspektrums ($E_{\max} = 2,470 \pm 0,050$ MeV) ermittelt, beträgt 3,49 MeV. Zwei Drittel der Umwandlungen erfolgen durch K-Einfang. Neben der Annihilationsstrahlung tritt eine intensive, aus drei Komponenten bestehende γ -Strahlung auf, deren

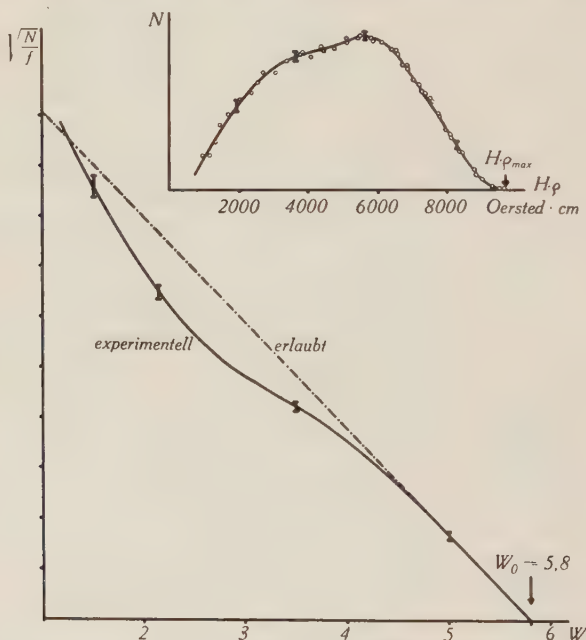


Fig. 1.

Positronenspektrum und Fermi-Diagramm des 53 Minuten Isotops
des Elements 43.

Energien mit Hilfe der in Kupfer, bzw. Goldfolien ausgelösten Compton- und Photoelektronen im Halbkreisspektrographen zu $0,866 \pm 0,006$ MeV, $1,89 \pm 0,06$ MeV und $2,84 \pm 0,10$ MeV bestimmt wurden.

¹⁾ P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER UND R. STEFFEN, *Helv. Phys. Acta* **19**, 418 (1946).

Ausserdem wurden die Konversionselektronen der 0,866 MeV γ -Linie beobachtet und gleichzeitig Konversionselektronen festgestellt, die γ -Linien von 0,753, 0,758, 0,768, 0,802, $0,835 \pm 0,006$ MeV entsprechen und bei den Umwandlungen der längerlebigen Isotopen des Elements 43 emittiert werden. Auffallend ist, dass nahezu die gleichen γ -Energiewerte bei den verschiedenen Isotopen des Elements 43 auftreten.

Für die Ausmessung des Positronenspektrums des 53-Minuten-Isotops wurden Präparate mit einer Trägersubstanzmenge von maximal 1,5 mg Re_2S_7 verwendet. Die beobachtete Impulsverteilung der Positronen (Fig. 1) weicht stark von derjenigen erlaubter Übergänge ab. Da die Zerfallsenergie eine Positronenemission auch über die zwei tiefsten Anregungsniveaus zulässt, kann ein komplexes Positronenspektrum vorliegen. Die Abweichung lässt sich jedoch damit nicht erklären; denn die Überlagerung erlaubter Teilspektren ergäbe eine wesentlich andere Impulsverteilung. Dieses Abweichen deutet auf einen verbotenen Positronenübergang hin. Wir beabsichtigen, den Anteil allfälliger Teilspektren zu bestimmen. Dadurch wird es möglich, im ganzen Impulsbereich den Verlauf des zum Übergang in den Grundzustand gehörenden Spektrums mit den Formen, die sich aus den verschiedenen Ansätzen der Theorie ergeben, zu vergleichen.

Untersuchung kurzlebiger metastabiler Kernanregungszustände mittelst verzögerter Koinzidenzen

von O. HIRZEL, P. STOLL und H. WÄFFLER (ETH. Zürich).

I. Prinzip der Messmethode.

Die Lebensdauern angeregter Kernzustände reichen von etwa 10^{-14} sec bis zu 10^{+6} sec und mehr, sie umfassen somit einen Bereich von über 20 Grössenordnungen. Eine direkte Bestimmung dieser Lebensdauern τ durch Messung der Abklingkurve der beim Übergang aus dem angeregten in den tieferen Zustand (im allgemeinen den Grundzustand) emittierten γ -Strahlung ist bisher nur für $\tau \geq 10$ sec gelungen¹⁾.

Die experimentelle Untersuchung der kurzlebigeren Anregungszustände wäre jedoch vom theoretischen Standpunkt aus interessant. Die Theorie²⁾ stellt nämlich einen Zusammenhang zwischen 1. der Lebensdauer eines Anregungszustandes, 2. der Anregungsenergie und 3. der Multipolordnung der beim Übergang emittierten

¹⁾ Siehe hierzu M. L. WIEDENBECK, Phys. Rev. **69**, 567 (1946).

²⁾ Siehe z. B. H. A. BETHE, Rev. of Mod. Physics **9**, (§ 87) (1937).

Glimmlampe L und variabler Kapazität C . Durch Veränderung von C können Verzögerungszeiten t_0 von 10^{-5} bis 10^{-2} sec eingestellt werden. Die Bestimmung von t_0 erfolgt folgendermassen: Die Impulse eines Zählers werden auf beide Zweige des Verstärkers gegeben und die Stösse von den Gittern der Rossstufe R auf einen Kathodenstrahloszillographen geführt. Das dem Abstand der Impulse auf dem Leuchtschirm entsprechende Zeitintervall t_0 wird für verschiedene Einstellungen von C mit einem Tongenerator, dessen Schwingungen ebenfalls auf den Oszillographen gegeben werden, bestimmt.

Da K_{sys} proportional $\exp(-\lambda t_0)$ abfällt, so muss bei Einstellung auf grosse Werte von t_0 K_{sys} sehr klein, die statistischen Schwankungen somit sehr gross werden. Nun sind aber sowohl K_{sys} als auch K_{zul} dem Koinzidenzaufhebungsvermögen τ_K des Verstärkers proportional, man kann somit der Abnahme von K_{sys} mit zunehmendem t_0 dadurch begegnen, dass man τ_K mit t_0 anwachsen lässt. Das erfolgt mit Hilfe der variablen Gitterwiderstände R in der Rossstufe, welche das Koinzidenzaufhebungsvermögen τ_K zwischen 10^{-6} und 10^{-3} sec zu verändern gestatten.

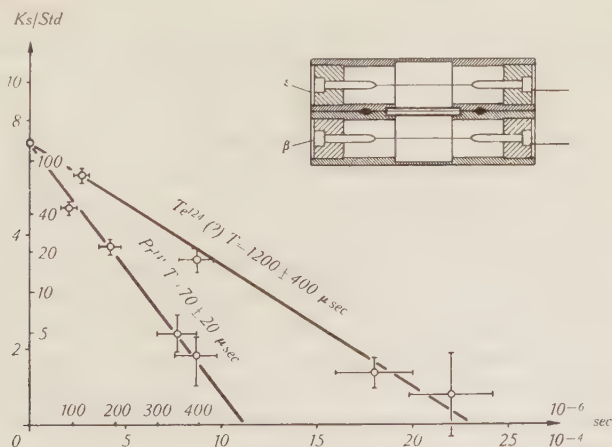


Fig. 2.

Anordnung der Zählrore und Abfallkurven der Kernanregungszustände.

Die Zahlen innerhalb des Koordinatensystems beziehen sich auf Pr^{141} , diejenigen außerhalb auf Te^{124} . Die vertikalen Striche bedeuten die statistischen Fehler der Meßpunkte, die horizontalen die Unsicherheit in der Verzögerungszeit des Verstärkers.

Die Anordnung der Zähler zeigt Fig. 2. Das für die Messung der Konversionselektronen bestimmte Zählrohr (ϵ) ist durch eine dünne Cellophanfolie (ca. 5μ) vom Präparat getrennt, das Fenster des β -Zählers wird durch eine Aluminiumfolie abgeschlossen, die ge-

nügend dick ist, um praktisch alle Konversionselektronen zu absorbieren. Es ist nämlich zweckmässig, die Konversionselektronen vom Eintritt in den β -Zähler abzuhalten, da sie dort lediglich einen Beitrag zu K_{zuf} liefern. (Die nichtkonvertierte γ -Strahlung lässt sich in dieser Weise natürlich nicht ausscheiden, doch beträgt die Ansprechwahrscheinlichkeit der Zähler für dieselbe bei der üblichen Füllung — 80 mm Argon mit einem Zusatz von 12 mm Alkohol-dampf — bestenfalls einige Prozent.) Wenn praktisch keine Konversionselektronen mehr in den β -Zähler eintreten können, so lässt sich die Richtigkeit der vorstehenden Überlegungen in einfachster Weise experimentell prüfen: vertauscht man nämlich die Zählrohre, so dass jetzt die im Zähler (ε) ausgelösten Impulse verzögert werden, die im β -Zähler entstehenden dagegen nicht, so dürfen nur noch zufällige, aber keine systematischen verzögerten Koinzidenzen mehr auftreten.

II. Resultate.

Es konnten an folgenden Kernen metastabile Anregungszustände ($T > 10^{-6}$ sec) nachgewiesen werden.

1. *Cer* Ce^{141} . Durch Bestrahlung mit langsamen Neutronen erhält man an Cer im Prozess $\text{Ce}^{140} (n, \gamma) \text{Ce}^{141}$ das aktive Isotop Ce^{141} . Dieses zerfällt mit einer Halbwertszeit von $T = 30d$ in das stabile Pr^{141} . Ce^{141} emittiert ein β -Spektrum der Grenzenergie $E_{\beta-} = 0,65$ MeV und ausserdem γ -Strahlen von 0,2 MeV¹⁾. Wir vermuteten, dass diese γ -Strahlung im Anschluss an den β -Zerfall emittiert wird, d. h. dass ein angeregter Zustand des Produktkernes Pr^{141} vorliegt. In diesem Fall müssten sich Koinzidenzen zwischen den β -Teilchen des Ce^{141} und den Konversionselektronen der γ -Strahlung beobachten lassen. Die Messungen haben diese Vermutung bestätigt. In Fig. 2 ist $\log(K_{\text{syst}})$ in Abhängigkeit von t_0 aufgetragen. Der erwähnte Anregungszustand besitzt eine Halbwertszeit von $T = 70 \pm 20$ Microsec. Aus der Theorie²⁾ erhält man mit dieser Halbwertszeit bei einer Anregungsenergie von 200 kv für die Multipolordnung des Überganges $l = 3$.

2. *Antimon*: Sb^{124} . Dieses radioaktive Isotop entsteht ebenfalls durch Neutroneneinfang an Sb^{123} . Es zerfällt unter β -Emission mit einer Halbwertszeit von 60d in Te^{124} . MITCHELL, LANGER und McDANIEL³⁾ haben im Spektrum des Sb^{124} eine weiche γ -Linie

¹⁾ M. L. POOL und I. D. KURBATOV, Phys. Rev. **63**, 463 A 15 (1943).

²⁾ Siehe z. B. H. A. BETHE, Rev. of Mod. Physics **9**, § 87 (1937).

³⁾ A. C. G. MITCHELL, L. M. LANGER und P. W. Mc DANIEL, Phys. Rev. **57**, 1107 (1940).

($h\nu < 69$ kv) gefunden. Durch neuere Messungen¹⁾ ist die Existenz dieser Linie allerdings wieder in Frage gestellt worden. Nach unserer Methode konnte jedoch ein Anregungszustand, der mit einer Halbwertszeit von $T = 1200 \pm 400$ Mikrosec. abfällt, nachgewiesen werden. Schreibt man diesen Zustand versuchsweise eine Anregungsenergie von ~ 70 KV zu, so erhält man mit der obigen Halbwertszeit für die Multipolordnung des Überganges wiederum $l = 3$.

Anmerkung bei der Korrektur: Nach Abschluss dieser Arbeit erhielten wir Kenntnis von den Mitteilungen von DE BENEDETTI und Mc GOWAN²⁾. Diese Autoren haben nach einer mit der unsrigen übereinstimmenden Methode ebenfalls metastabile Anregungszustände an Ta¹⁸¹ und Re¹⁸⁷ nachweisen können.

Dielektrische Anomalien an Barium-Titanat-Einkristallen

VON H. BLATTNER, B. MATTHIAS, W. MERZ und P. SCHERRER (ETH. Zürich).

Die ausführliche Arbeit erscheint später in den H.P.A.

Komplexspektren der Manganhalogenide

VON J. BACHER und E. MIESCHER (Basel).

MnCl und *MnBr*: W. MÜLLER³⁾ hat vor einigen Jahren komplizierte Bandenspektren, wie man sie sowohl in Emission als auch in Absorption an den Dämpfen von Manganchlorid und -bromid beobachtet, in überzeugender Weise als Multiplettsysteme vom Typus ${}^7\Pi - {}^7\Pi$ gedeutet. Er konnte die Aufspaltung der Multipletterme der Moleküle MnCl und MnBr vollständig angeben und fand sie in Übereinstimmung mit der theoretischen Erwartung. Es ist anzunehmen, dass es noch zahlreiche weitere Bandenspektren von dieser Art geben wird, die im Sinne der bei den Atomspektren verwendeten Terminologie als Komplexspektren zu bezeichnen sind.

MnH: Tatsächlich hat NEVIN⁴⁾ eine äusserst komplexe, in Linien aufgelöste Bande des Manganhydrids (MnH) in vollständiger Weise als ${}^7\Pi - {}^7\Sigma$ -System analysieren können.

¹⁾ W. E. MEYERHOF und G. SCHARFF-GOLDHABER (Bull. Am. Phys. Soc. **22**, Nr. 2).

²⁾ S. DE BENEDETTI und F. K. Mc GOWAN, Phys. Rev. **71**, 380 (1947).

³⁾ W. MÜLLER, Helv. Phys. Acta **16**, 1, 1943.

⁴⁾ T. E. NEVIN, Proc. Roy. Irish Acad. A. **48**, 1 (1942); **50**, 123 (1945).

MnF: ROCHESTER und OLSSON¹⁾ fanden im Dampf des Manganfluorids bei Temperaturen über 1400° C im Gebiete 2350—2500 Å ein System von Absorptionsbanden des *MnF* — Moleküls, das sich leicht in ein einfaches Vibrationsschema einordnen liess mit den Frequenzen $\omega'' = 618,8$ $\omega' = 637,2$ cm⁻¹. Ausserdem beobachteten sie jedoch zwischen 3300 und 3650 Å ein komplexes Absorptionsspektrum, als dessen Träger sie das dreiatomige Molekül *MnF*₂ vermuteten.

Um die Natur dieses Bandensystems, dessen Analogie zu den Komplexspektren schon MÜLLER²⁾ betont, aufzuklären, haben wir nun versucht, die *MnF*-Banden lichtstark in Emission anzuregen. Das ist uns gelungen mit Hilfe einer Gleichstromentladung zwischen Nickelelektroden in einem mit Helium gefüllten Pyrexrohr. Die Entladung (1000 Volt, 0,3 Amp.) wurde dabei mittels eines durchbohrten metallischen Einsatzes eingeschnürt, wobei der Dampf von *MnF*₂ aus einem kleinen elektrisch geheizten Platintiegelchen unmittelbar in die Einschnürstelle hineingeleitet wurde. Das Heliumgas zirkulierte rasch durch ein Reinigungssystem, so dass es gelang, die überaus stark störenden *SiF*-Banden praktisch völlig fernzuhalten. Wir erhielten am Gitter mit Expositionszeiten von 10 Minuten intensive und von Verunreinigungen freie Spektrogramme der Dispersion 2,8 Å/mm, die auch nur wenig von Atomlinien überlagert sind. Das Emissionssystem erstreckt sich in fünf Gruppen über das Wellenlängengebiet 3670—3330 Å und ist identisch mit dem von ROCHESTER und OLSSON³⁾ beobachteten. Die Banden sind grösstenteils nach Violett abschattiert, im kurzwelligen Gebiet zum Teil auch nach Rot. Die intensivste zwischen 3520 bis 3480 Å gelegene Gruppe enthält die 0,0-Banden. Es lässt sich unschwer die von ROCHESTER und OLSSON³⁾ im kurzwelligen Absorptionssystem beobachtete Grundfrequenz von 619 cm⁻¹ als Abstand der Gruppen erkennen.

MnJ: Versuche, Manganjodid in gleicher Weise anzuregen, führten ebenso wenig zum Erfolg wie die Bemühungen von MESNAGE⁴⁾, das Spektrum von *MnJ* in der Hochfrequenzentladung zu erzeugen. Das Emissionsspektrum besteht aus intensiven Manganlinien und lässt keinerlei Banden erkennen. Dagegen gelang es, in Absorption ein bisher unbekanntes Spektrum aufzufinden, das offenbar das Analogon zu den Komplexspektren der leichteren

¹⁾ G. D. ROCHESTER und E. OLSSON, Z. S. f. Phys. **114**, 495 (1939).

²⁾ W. MÜLLER, Helv. Phys. Acta **16**, 1, 1943.

³⁾ G. D. ROCHESTER und E. OLSSON, Z. S. f. Phys. **114**, 495 (1939).

⁴⁾ P. MESNAGE, Ann. d. physique **12**, 5, 1939.

Halogenide bildet. Hierbei wurde der Dampf von MnJ_2 im abgeschmolzenen Quarzrohr von 10 cm Länge auf 1100°C überhitzt; der Ansatz mit dem Salz befand sich auf der Temperatur von 650°C . Unter diesen Bedingungen wird alles Licht kurzwelliger als 3950 \AA durch den Dampf absorbiert, im Gebiet zwischen 3960 bis 4180 \AA beobachtet man jedoch scharfe und intensive Banden komplexer Natur, die einheitlich nach Violett abschattiert sind und keinerlei Rotationsauflösung zeigen. Von den Linien tritt allein das Mangantriplett bei 4033 \AA auf. Man vermutet die 0,0-Banden etwa bei 4020 \AA , wo die Absorption maximal ist. Die Differenz von 238 cm^{-1} , wie man sie für das MnJ -Molekül erwartet, tritt als Bandenzug deutlich in Erscheinung. Im übrigen lässt dieses Spektrum keinerlei Einteilung in Gruppen mehr erkennen, da offenbar die Multiplettaufspaltung von der Grössenordnung der Schwingungsfrequenzen geworden ist.

Sowohl MnF wie MnCl und MnBr weisen bei 5000 \AA je ein weiteres in Emission intensiv in Erscheinung tretendes Bandensystem auf, die alle einen überraschend ähnlichen Bau zeigen und die ebenfalls vom Typus der Komplexspektren sind. Ihr Abstand vom kurzwelligen System (ca. 6000 cm^{-1}) deckt sich in auffälliger Weise mit der Differenz zwischen den Termen verschiedener Multiplizität des Manganatoms.

Ins einzelne gehende Angaben über die Multiplettstruktur dieser Spektren müssen der später erscheinenden ausführlichen Arbeit überlassen werden.

Appareillage et méthode de mesure des préparations biologiques radioactives

par G. JOYET, C. A. C. R., Lausanne.

Ces préparations qui se présentent sous la forme de coupes ou de cendres de tissus, sont disposées en couche plane dans l'évidement fraisé d'une nacelle d'anticorodal. La nacelle amovible et le tube de GEIGER sont placés dans un dispositif (fig. 1) qui assure une disposition géométrique fixe de la couche active relativement au tube de GEIGER et abaisse le rayonnement ambiant par un écran de plomb à 8 Imp./min .

Comme la variation de la sensibilité en fonction de la température du tube à alcool (75 mm) — argon (15 mm) peut être notable (fig. 2) (vide poussé à 1 mm environ le dispositif est logé dans un thermostat qui maintient la température constante ($\pm 0,25^\circ \text{C}$) à 2 à 3 degrés au-dessus de la température du laboratoire.

La quantité de solution radioactive injectée à l'animal d'essai est déterminée par pesée. Un échantillon de cette solution, également pesé, est disposé dans une nacelle pour en mesurer l'activité dans les mêmes conditions d'absorption que les cendres ou les coupes de tissus.

Le dispositif a été essayé avec deux isotopes, l'un, le ^{42}K à émission β dure de 3,5 MeV, l'autre, le ^{59}Fe avec des émissions β

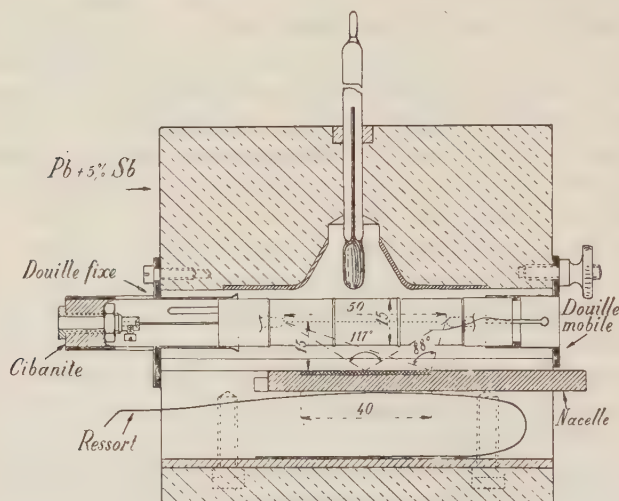


Fig. 1.

Dispositif-compteur pour cendres radioactives.

molles de 0,9 et 0,4 MeV. Les cendres actives qui ont une densité de $0,85 \pm 10\%$, sont obtenues par calcination des tissus durant 30 min à 700°C .

Pour le ^{42}K et pour une couche active de 0 à 60 mg/cm^2 (0 à 1 mm d'épaisseur), l'activité est proportionnelle au poids de cendres par unité de surface. Mais pour le ^{59}Fe , la courbe d'activité n'est plus linéaire.

L'absorption du rayonnement au travers des cendres non actives a été étudiée pour les deux mêmes isotopes. Si I_0 est l'activité initiale de la couche active très mince déposée au fond de la nacelle, $I(x)$ l'activité résiduelle après une absorption au travers de $x\text{ mg/cm}^2$ de cendres non actives, le coefficient

$$\eta_x = \frac{\int_0^x I(x) dx}{I_0 x}$$

indique l'effet de l'absorption sur une couche émissive d'épaisseur x . η_x varie de 1 à $1,01_5$ à 0,98 avec le ^{42}K pour des couches de 0 à 20 à 60 mg/cm^2 . Mais dans le cas d'un rayonnement mou comme le fer, ce facteur varie considérablement.

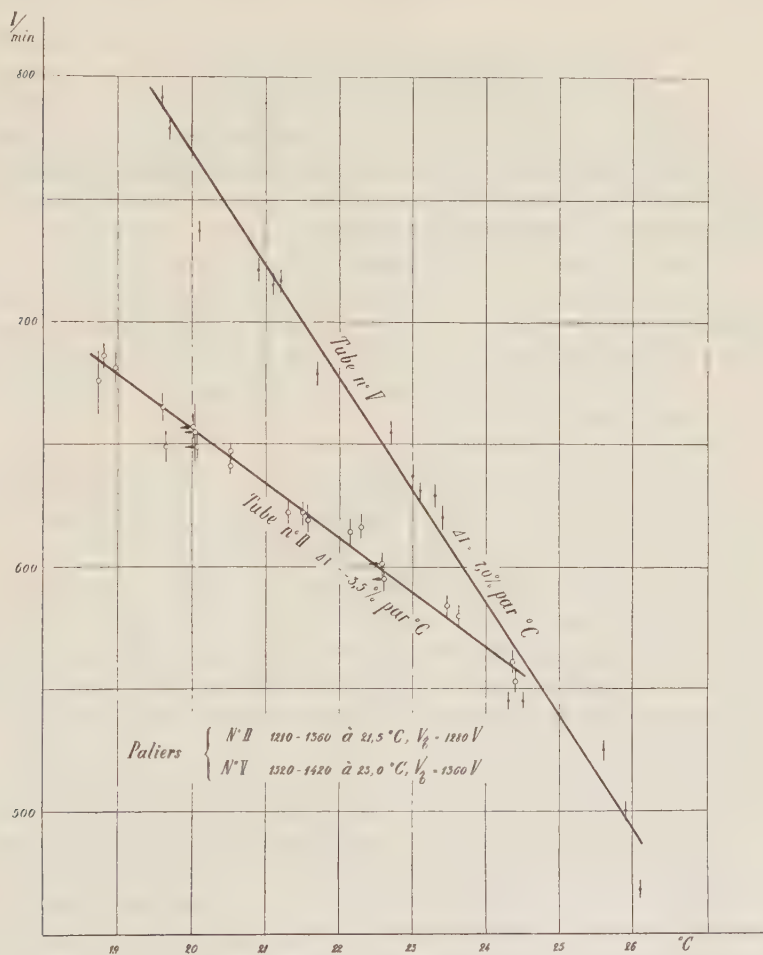


Fig. 2.

Sensibilité du tube de GEIGER alcool-argon à la température.

Cette méthode de travail, qui fera l'objet d'une publication plus étendue, nous a permis d'établir la distribution complète du potassium radioactif injecté dans l'organisme, en fonction du temps¹⁾.

¹⁾ G. JOYET, Bull. Acad. suisse des Sc. Méd., **2**, 363-76 (1947).

Über Aufbau und Rückwirkung bei der Niederdruckentladung

VON H. L. VON GUGELBERG ETH. Zürich).

(Erscheint demnächst in den H.P.Ä.)

Über Messungen des Thomson-Koeffizienten

VON G. J. EKKERS und A. FARNER (Zürich).

Nach Messungen von HOLM und Mitarbeitern zeigen Schaltkontakte, deren Elektroden aus demselben reinen Metall bestehen, auch wenn keine Funkenbildung auftreten kann, einen Materialtransport von der Anode zur Kathode.

Die Ursache dieser sog. „Feinwanderung“ ist zu suchen in der Bildung einer flüssigen Brücke an der Einschnürung zwischen den Elektroden kurz vor der Stromunterbrechung. Es zeigt sich, dass die Anode zuerst schmilzt und dass später die Brücke anodenseitig reisst, so dass bei jeder Schaltung die Anode Material verliert zugunsten der Kathode.

Eine Erklärung für diese Unsymmetrie können thermoelektrische Effekte geben, welche nicht dem Quadrate der Stromstärke doch dieser Stromstärke selber proportional sind. Als solche kommen in Betracht der Peltiereffekt und der Thomsonscheffekt.

Der Peltiereffekt kann nur entstehen, wenn zwei verschiedene Leiter vorhanden sind. HOLM nimmt das Vorhandensein solcher im Schaltkontakt an, indem er spricht vom Peltiereffekt zwischen fester und flüssiger Phase des Elektroden-Metalles. Gegen diese Auffassung spricht aber die Behauptung CERMAKS, dass die Peltierwärme im Schmelzpunkt eine stetige Temperaturfunktion ist. DIETRICH glaubt an das Vorhandensein von Oxydschichten zwischen den Kontaktflächen. Man kann dann aber nicht einsehen, wieso reines Gold nach HOLMschen Messungen eine so beträchtliche Feinwanderung aufweist. Nach unserer Ansicht muss deshalb der Peltiereffekt als Erklärung für die Feinwanderung abgelehnt werden.

Abschätzungen von HOLM über den Materialtransport, den der Thomsonscheffekt hervorrufen könnte, geben Werte, welche grössenordnungsmässig mit seinen Messungen übereinstimmen. Seine Rechnung verlangt aber, dass die Feinwanderung proportional der dritten Potenz der geschalteten Stromstärke sei. Aus seinen Messungen hingegen schliesst er auf eine Proportionalität mit dem Quadrat dieser Stromstärke. Durch Messungen der Feinwanderung an reinen Silberkontakten, worüber wir in nächster Zukunft noch berichten werden, konnten wir zeigen, dass der Materialtransport

sehr stark von der Schaltgeschwindigkeit und auch noch vom Kontaktdruck abhängt. Bei Festhaltung dieser beiden Parameter zeigte sich bei unseren Messungen die Feinwanderung von reinem Silber proportional der dritten Potenz der Stromstärke, wie es die Rechnung verlangt.

Ferner äussert HOLM noch Bedenken hinsichtlich der Richtung. Nach allen bis jetzt bekannten Messungen ist der Thomseffekt für die von HOLM auf Feinwanderung untersuchten reinen Metallen bei mässigen Temperaturen positiv, d. h. der Strom erzeugt Wärme, wenn er von höherer zur tieferen Temperatur fliesst. Dies ist aber, wie man leicht einsieht, gleichbedeutend mit einer Feinwanderung von der Kathode zur Anode. Wenn infolgedessen nicht der Thomson-

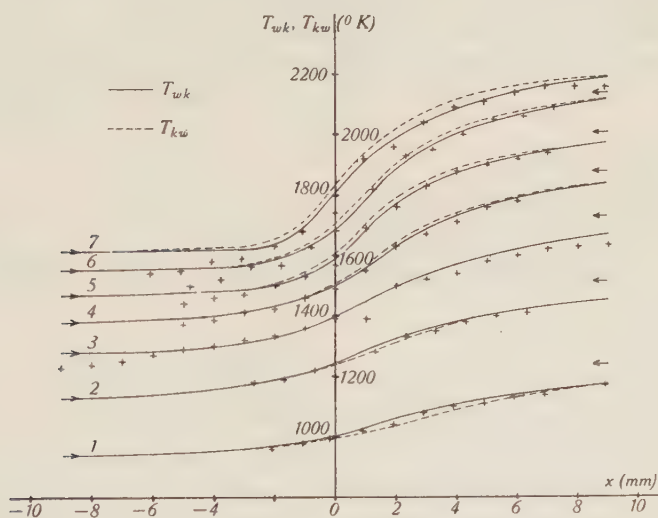


Fig. 1.

effekt bei höheren Temperaturen als bis jetzt gemessen, sein Vorzeichen ändert, muss er als Erklärung für die Feinwanderung ausschneiden.

SOMMERFELD vermutet auf Grund theoretischer Überlegungen, dass der Thomseffekt für geschmolzene Metalle negativ sein müsse. Für sämtliche Alkalimetalle mit Ausnahme von Lithium ist diese Auffassung durch Messungen von BIDWELL und BRIDGMAN bestätigt. Messungen über den Thomseffekt an den von HOLM auf Feinwanderung untersuchten Kontaktmetallen, wie Wolfram, Silber, Platin und Gold bei höheren Temperaturen oder gar im geschmolzenen Zustand liegen unseres Wissens nicht vor.

Unsere bisherigen Messungen wurden durchgeführt in einem Temperaturbereich von 900 bis 2100° K. Die Messmethode beruht auf der Tatsache, dass die Thomsonwärme nicht von der Art des Temperaturgefälles und nicht vom Querschnitt des Leiters abhängig ist. Unser Messobjekt war ein Wolframdraht von ca. 20 cm Länge, welcher über die Hälfte seiner Länge einen Durchmesser von 100 μ hatte und über die andere Hälfte einen Durchmesser von 150 μ . Die Querschnittsänderung beanspruchte eine Länge von ca. 150 μ .

Der Draht war in einem evakuierten Glasgefäss von bekannter Absorption ausgespannt und mit Stromzuführungen versehen. Mit Hilfe eines Glühfadenpyrometers wurde der Temperaturverlauf dem Draht entlang in der Nähe der Sprungstelle des Durchmessers in Abhängigkeit von Grösse und Richtung eines den Draht durchfliessenden Gleichstromes gemessen (Fig. 1).

Die Kurven T_{wk} und T_{kw} zeigen diesen Temperaturverlauf entlang dem Draht, in der Nähe der Sprungstelle des Durchmessers,

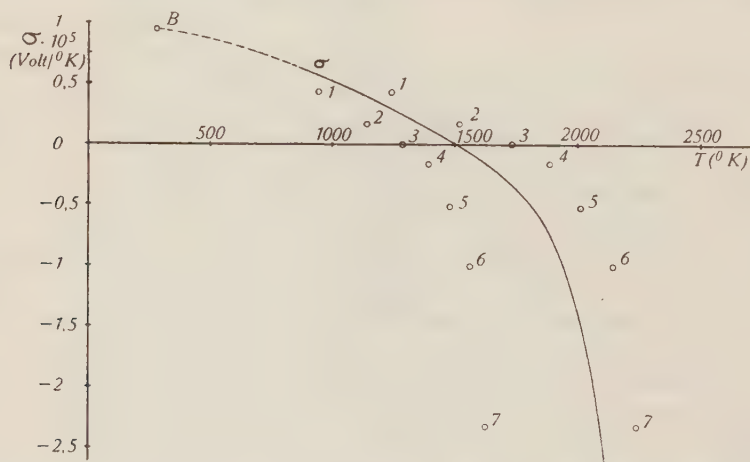


Fig. 2.

bei verschiedenen Stromstärken, und zwar einmal für die Stromrichtung von warm nach kalt (T_{wk} ausgezogen) und einmal für die Stromrichtung von kalt nach warm (T_{kw} , gestrichelt).

Man sieht, dass die Kurve, welche bei ca. 1400° K durch die Null-Achse geht, keinen merklichen Thomsons Effekt zeigt. Darunter wird der Thomsons Effekt immer stärker positiv, darüber immer stärker negativ.

Rein qualitativ ist hiermit gezeigt, dass für Wolfram oberhalb einer bestimmten Temperatur, welche unterhalb dem Schmelzpunkt

liegt, der Thomseffekt negativ ist und somit zur Erklärung der Feinwanderung herangezogen werden kann.

Wir haben auch noch aus unseren Messungen durch Aufstellung der Energiebilanz des kurzen Drahtstückes beidseitig der Sprungstelle des Durchmessers bis zu den Stellen, wo kein Temperaturgefälle mehr vorhanden ist, und mit Hilfe des bekannten Gesamtemissionsvermögens und spezifischen elektrischen Widerstandes von Wolfram den Thomsonkoeffizienten, d. h. die Materialkonstante, die die entwickelte Wärmemenge pro Sekunde bei Durchgang der Stromeinheit darstellt, wenn das Temperaturgefälle ein Grad ist, berechnet (Fig. 2). Die Kurve zeigt den Thomsonkoeffizienten σ in Abhängigkeit von der Temperatur zwischen 900 und 2100° K. Nach unten ist die Kurve extrapoliert bis zum Eispunkt. Der Punkt *B* ist der von BRIDGMAN angegebene Wert von σ für Wolfram bei 0° C, welcher, wie man sieht, mit unseren Messungen recht gut übereinstimmt.

Influence du fluide entraîné sur la période d'un pendule de torsion

CL. ATTINGER, Neuchâtel.

La publication détaillée paraîtra dans un prochain numéro des H.P.A.

Scherungsschwingungen quadratischer Platten

von H. MÄHLY und A. TRÖSCH (ETH. Zürich).

Wir haben hier vor zwei Jahren über Längsschwingungen quadratischer Platten berichtet¹⁾ und festgestellt, dass man, zum mindesten für die Grundschwingungen, zwei Typen findet: zwei eigentliche Längsschwingungen und eine Scherungsschwingung; wir berichteten damals über den ersten Typus, hier die wichtigsten Resultate über den zweiten.

Das elastische Verhalten der Platte ist (da s'_{16} und s'_{26} nach Voraussetzung verschwinden) durch die Moduln $s'_{11} = s'_{22}$, s'_{12} und den Scherungsmodul s'_{66} bestimmt¹⁾. Setzen wir zur Abkürzung

$$\mu = -s'_{12}/s'_{11}; \quad \sigma = s'_{11}/s'_{66},$$

so ist μ die Querdehnungszahl, während σ das Verhältnis von Scherungshärte zu Dehnungshärte angibt; kleines σ bedeutet also: Die Platte lässt sich leicht zu einem Rhombus, aber nur schwer zu

¹⁾ H. MÄHLY, *Helv. phys. acta* **18**, 248 (1945).

einem Rechteck deformieren. Die Frequenz der Scherungsschwingung wird vor allem von s_{66} abhängen. Wir setzen deshalb

$$\nu l = \frac{1}{2\sqrt{\varrho s_{66}}} \cdot F(\sigma, \mu).$$

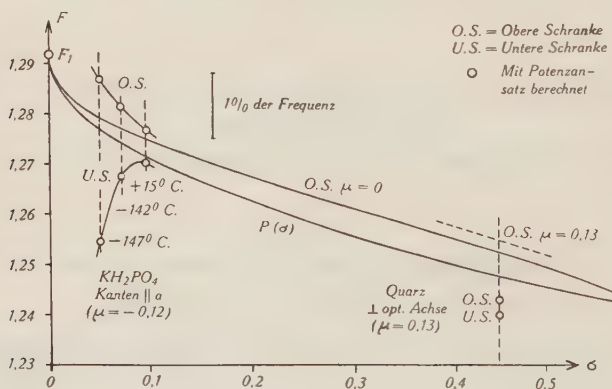
ν = Frequenz der Schwingung.

l = Kantenlänge der Platte.

ϱ = Dichte des Materials.

Unsere Aufgabe war also die Berechnung des Faktors $F(\sigma, \mu)$.

BECHMANN¹⁾ erhält mit seiner Theorie, die auf starken Vereinfachungen beruht, $F = \sqrt{2}$, unabhängig von σ und μ , und muss einen willkürlichen „Korrekturfaktor“ (0,877) einführen, um in Übereinstimmung mit seinen Messungen an Quarz ($F = 1,24$) zu kommen. EKSTEIN²⁾ verwendet zur Bestimmung von F das RITZsche Verfahren mit unendlich vielen Koordinatenfunktionen und berech-



net die erste Wurzel der unendlichen Säkulargleichung durch eine Näherungsformel ($F = 1,283$). Dazu ist zu bemerken:

1. Das verwendete Funktionensystem ist nicht vollständig; man erhält daher auf diese Weise eine obere Schranke für F , die aber, wie man leicht zeigt, für den Wert $\sigma = 0$, der allerdings physikalisch nicht realisierbar ist, mit dem exakten Wert übereinstimmt.

2. Man kann die EKSTEINsche Säkulargleichung umformen auf die Gleichung

$$\frac{\pi F}{2} + \operatorname{tg} \frac{\pi F}{2} = 0; \text{ erste Wurzel: } F_1 = F(0, \mu) = 1,2915.$$

¹⁾ R. BECHMANN, ZS. f. Ph. **117**, 180 (1941) und **118**, 527 (1942).

²⁾ H. EKSTEIN, Phys. Rev. **66**, 108 (1944).

3. Geht man direkt vom HAMILTONschen Prinzip aus und setzt $s_{11} = 0$ (bzw. $\gamma_{11} \rightarrow \infty$)⁴⁾, so erhält man sehr viel einfacher dieselbe Gleichung und ausserdem die zugehörige Schwingungsfunktion.

Für „reale“ Platten ($\sigma = 0$) haben wir zunächst — wie früher für die Längsschwingungen — mit Hilfe eines Potenzansatzes (11-gliedriges Polynom mit 4 freien Konstanten) obere und untere Schranken für F berechnet. Für grössere σ liegen diese Schranken nah beieinander, für kleine σ dagegen nicht. Wir versuchten deshalb, für kleine σ Näherungswerte aus einer Art Störungsrechnung abzuleiten. Die Schwierigkeit liegt darin, dass in der Differentialgleichung für $\sigma = 0$ ein Koeffizient (γ_{11}) unendlich wird⁴⁾. Die Kurve $F(\sigma)$ (für festes μ) hat deshalb bei $\sigma = 0$ keine endliche Tangente, aber eine für alle μ gemeinsame „Schmiegungsparabel“ $P(\sigma)$:

$$P(\sigma) = F_1 - \frac{1}{\pi} \left(\frac{\pi^2 F_1^2 - 8}{\pi^2 F_1^2 + 8} \right)^{3/2} = 1,2915 - 0,0648 \sqrt{\sigma}.$$

Der ziemlich komplizierte Ansatz zur Berechnung von $P(\sigma)$ lässt sich auch für endliche σ -Werte als RITZscher Ansatz verwenden; die so berechnete obere Schranke hängt nur sehr wenig von μ ab.

Die beiden Berechnungsmethoden — Potenzansatz und Entwicklung nach $\sqrt{\sigma}$ — ergänzen sich gegenseitig, so dass die Frequenz der Scherungsgrundschwingung für alle σ, μ -Werte auf $\pm 2^0_{00}$ genau berechnet werden kann. Alle uns bekannten Messungen stimmen innerhalb ihrer Genauigkeit (ca. 1%) mit unserer Rechnung überein.

⁴⁾ Vgl. W. VOIGT, Lehrbuch der Kristallphysik, § 343.

Über die falschen Nullstellen der Eigenwerte der S -Matrix

von Res Jost.

(20. I. 1947.)

§ 1. Einleitung.

In mehreren Arbeiten hat W. HEISENBERG¹⁾ versucht, einen Rahmen für eine zukünftige divergenzfreie Theorie der Elementarteilchen zu geben. Dazu wählt er zunächst unter den Begriffen der gewöhnlichen Quantentheorie solche aus, die mit grosser Wahrscheinlichkeit auch in einer zukünftigen Theorie ihren Sinn behalten. Die entsprechenden Grössen nennt er „beobachtbar“. Beobachtbar sind *Streuquerschnitte* (im allgemeinsten Sinn) und die *Energiewerte stationärer Zustände* von Systemen. Weiter glaubt HEISENBERG in der *Streumatrix* S eine Grösse gefunden zu haben, aus der sich einerseits nach einfachen Vorschriften die beobachtbaren Grössen herleiten lassen und die andererseits in einer zukünftigen Theorie eine ähnliche Rolle spielen könnte, wie der Hamiltonoperator in der bisherigen Theorie. Eine allgemeine Vorschrift, um für ein bestimmtes System die Streumatrix anzugeben, ist bisher unbekannt.

In der vorliegenden Note beschäftigen wir uns mit der Vorschrift HEISENBERGS zur Bestimmung der stationären Zustände.

Es ist naheliegend, den Heisenbergschen Formalismus zunächst auf einfache Probleme der gewöhnliche nichtrelativistischen Quantenmechanik anzuwenden. Die neuen Vorschriften sollen dann genau dasselbe liefern, wie die alte Theorie, da kein Grund besteht, an der Richtigkeit der letzteren zu zweifeln. MA²⁾ hat zuerst gezeigt, dass sich dabei für die Anwendung der Heisenbergschen Vorschrift zur Bestimmung der stationären Zustände Schwierigkeiten ergeben. Diese Schwierigkeiten sollen hier weiter untersucht werden.

Wir legen unseren Überlegungen ein Zweiteilchensystem zugrunde. Die Teilchenzahl soll erhalten bleiben. Zwischen den Teilchen wirke eine Zentralkraft mit dem Potential $V(r)$. Die Schwerpunktsbewegung wird separiert. Im Raum der Relativkoordinaten führt man Polarkoordinaten ein und separiert die Kugelfunktionen.

¹⁾ W. HEISENBERG, Z. S. f. Phys. **120**, 513 und 673 (1943); C. MÖLLER, Kgl. Danske Vidensk. Selskab XXIII, Nr. 1 (1945) und XXIV, Nr. 19 (1946).

²⁾ S. T. MA, Phys. Rev. **69**, 668 (1946); **71**, 195 (1947); D. TER HAAR, Physica **12**, 501 (1946); R. JOST, Physica **12**, 509 (1946).

Der Radialanteil der Wellenfunktion sei mit $1/r \varphi(r)$ bezeichnet. Beschränkt man sich auf Zustände mit dem Impulsmoment $l = 0$, so lautet die Schrödingergleichung (in einem geeigneten Maßsystem):

$$\varphi'' + k^2 \varphi = V(r) \varphi. \quad (1)$$

Hierbei ist $|k|$ der Betrag des Radialimpulses und k^2 die Energie. Weiter soll $V(r)$ für grosse r mindestens wie $1/r^2$ verschwinden.

Die im Nullpunkt verschwindende Lösung von (1) zeigt für reelles, positives k das asymptotische Verhalten:

$$\varphi(r) \sim C(e^{-ikr} - S(k) \cdot e^{ikr}) \quad (2)$$

wo C eine uninteressante Konstante ist. e^{-ikr} stellt (bei geeigneter Verfügung über den Zeitfaktor) eine einlaufende Kugelwelle, $-S(k)e^{ikr}$ die ihr entsprechende auslaufende Streuwelle dar. $S(k)$ ist eindeutig bestimmt und von der Gestalt $e^{2i\eta}$, wobei $\eta(k)$ die Streuphase bedeutet.

Bezieht man in unserem Problem die S-Matrix auf Kugelwellen, so ist sie diagonal und das oben definierte $S(k)$ ist der Eigenwert zu $l = 0$. Nach HEISENBERG-KRAMERS hat man sich $S(k)$ als analytische Funktion von k zu denken. Für nicht reelle k wird $S(k)$ durch analytische Fortsetzung gewonnen. Offenbar wird Gleichung (2) für komplexe k sinnlos, weil die eine Exponentialfunktion gegen die andere asymptotisch verschwindet¹⁾.

Die Vorschrift lautet nun: man suche die Nullstellen von $S(k)$ auf der $-i$ -Axe. Die Quadrate der zugehörigen k -Werte sind die Energiewerte der stationären Zustände. Diese Vorschrift ist nicht hinreichend. Es gibt im allgemeinen Nullstellen von $S(k)$ auf der $-i$ -Axe, denen keine Eigenwerte von (1) entsprechen, denen also keine stationären Zustände zugeordnet werden können. Solche Nullstellen bezeichnen wir mit dem Attribut „falsch“, die übrigen heissen richtige Nullstellen. Nach KRAMERS²⁾ gilt in den richtigen Nullstellen k_0 :

$$-i \left. \frac{dS(k)}{dk} \right|_{k=k_0} > 0. \quad (3)$$

Wir nehmen jedoch diese Beziehung nur ernst, wenn die Nullstelle k_0 nicht mit einer Singularität der im nächsten Paragraphen definierten Funktion $f(-k, r)$ zusammenfällt.

An den folgenden Beispielen erkennt man leicht, dass (3) zur Unterscheidung der falschen und richtigen Nullstellen nicht verwendet werden kann.

¹⁾ WHITTAKER-WATSON, Modern Analysis, § 8.32.

²⁾ H. A. KRAMERS, Hand- und Jahrbuch der chemischen Physik I, 312 (1938).

§ 2. Die Funktion $f(k, r)$, Beispiele.

Ich möchte in diesem Paragraphen zeigen, dass das Auftreten falscher Nullstellen keineswegs als eine Seltenheit betrachtet werden darf.

Bevor wir zur Behandlung des Exponentialpotentials $V(r) = a \cdot e^{-r}$, an welchem MA die falschen Nullstellen gefunden hat, übergehen, erweist es sich als zweckmässig, eine Lösung $f(k, r)$ von (1) zu definieren, die sich durch ein einfaches asymptotisches Verhalten auszeichnet. $f(k, r)$ sei asymptotisch eine auf die Amplitude 1 normierte „einlaufende Kugelwelle“.

$$f(k, r) \sim e^{-ikr}. \quad (4)$$

Durch (4) ist $f(k, r)$ in der Halbebene $J[k] \leq 0$ der komplexen k -Ebene eindeutig bestimmt und stellt dort für festes r eine analytische Funktion von k dar. In der oberen Halbebene gewinnen wir $f(k, r)$ durch analytische Fortsetzung nach k . Unter einem Regularitätspunkt k von $f(k, r)$ wollen wir einen Punkt verstehen, in welchem $f(k, r)$ für alle r , die nicht Singularitäten von (1) sind, regulär ist. Wir werden in § 3 sehen, dass es dazu genügt, dass für ein r_0 $f(k, r_0)$ und $f'(k, r_0)$ regulär sind. In jedem Regularitätspunkt k ist $f(k, r)$ eine Lösung von (1). $f(k, r)$ und $f(-k, r)$ bilden ein Fundamentalsystem, es sei denn, k oder $-k$ seien Singularitäten. Natürlich kann $f(k, 0)$ im allgemeinen nicht verschwinden, da der Nullpunkt eine Senke ist. Diejenige Lösung, die sich asymptotisch wie $e^{ikr} - S(k) \cdot e^{ikr}$ verhält (und daher im Nullpunkt verschwindet), bezeichnen wir mit $\varphi(k, r)$. Es gilt:

$$\varphi(k, r) = f(k, r) - \frac{f(k)}{f(-k)} \cdot f(-k, r) \quad (5)$$

wobei der Kürze halber $f(k, 0) = f(k)$ gesetzt ist. Weiter ist

$$S(k) = \frac{f(k)}{f(-k)}. \quad (6)$$

In dieser Darstellung sind richtige und falsche Nullstellen leicht zu trennen. Richtige Nullstellen sind Nullstellen des Zählers, falsche Nullstellen Unendlichkeitsstellen des Nenners (diese brauchen nicht Pole zu sein) auf der $-i$ -Axe¹).

¹) Falls $f(-ip) = 0$, $p > 0$ ist, ist $f(-ip, r)$ nach (4) eine Eigenfunktion von (1), und umgekehrt: Jede Eigenfunktion von (1) ist ein Multiplum von $f(-ip', r)$, $p' > 0$ mit $f(-ip') = 0$.

Von nun an wollen wir, sofern nichts anderes gesagt wird, voraussetzen, dass die richtigen Nullstellen nicht zufälligerweise Singularitäten von $f(-k, r)$ sind.

Um die Lösung $f(k, r)$ von

$$\varphi'' + k^2 \varphi = a \cdot e^{-r} \cdot \varphi \quad (7)$$

zu finden, setzen wir eine Reihe an¹⁾:

$$f(k, r) = e^{-ikr} \sum_{\nu=0}^{\infty} C_{\nu}(k) \cdot e^{-\nu r}, \quad C_0 = 1 \quad (8)$$

was für C_{ν} auf die Rekursion führt:

$$C_{\nu}(k) = \frac{a \cdot C_{\nu-1}(k)}{\nu(2ik + \nu)} \quad (9)$$

oder

$$C_{\nu}(k) = \frac{a^{\nu}}{\nu!} \frac{\Gamma(2ik + 1)}{\Gamma(2ik + \nu + 1)} \quad (10)$$

woraus man erkennt, dass die Punkte $k = -(\mu/2)i$, $\mu = 1, 2, \dots$ Pole von $f(-k, r)$ und $f(-k)$ sind, also zu falschen Nullstellen führen.

Die Reihe (8) lässt sich aufsummieren und ergibt für $f(k, r)$:

$$f(k, r) = e^{-ik \log(-a)} \Gamma(2ik + 1) \cdot J_{2ik} \left[2\sqrt{-a} \cdot e^{-\frac{r}{2}} \right]. \quad (11)$$

Daraus ersieht man nebenbei, dass eine richtige Nullstelle sehr wohl mit einer Singularität von $f(-k, r)$ zusammenfallen kann. Man hat nur a so zu wählen, dass für ganzzahliges n $J_n(2\sqrt{-a}) = 0$ ist.

In den falschen Nullstellen wird zwar $f(-k, r)$ unendlich, aber $\varphi(k, r)$ aus (5) verschwindet identisch. Dies ist typisch für falsche Nullstellen.

Weiter verifiziert man ohne Mühe, dass für $a > 0$ in der Hälfte der falschen Nullstellen (3) erfüllt ist, wodurch die dort gemachte Bemerkung gerechtfertigt ist.

Entsprechend wie beim Exponentialpotential liegen die Verhältnisse bei

$$V(r) = \sum_{\nu=1}^{\infty} a_{\nu} e^{-\nu r} \quad (12)$$

(konvergent für $\operatorname{Re}[r] > 0$).

Den Ansatz (8) übernimmt man. An die Stelle von (9) tritt eine etwas verwickeltere Rekursion. Das Typische aber, die Nenner $\nu(2ik + \nu)$, bleiben und erzeugen im allgemeinen falsche Nullstellen in den Punkten $k = -(\mu/2)i$, $\mu = 1, 2, 3, \dots$

¹⁾ INCE, Ordinary Differential Equations. New York 1944, S. 381.

Zwei elementar behandelbare Beispiele lauten:

$$V(r) = \alpha \cdot \frac{e^{-r}}{1 - e^{-r}}$$

mit

$$f(k) = \prod_{n=1}^{\infty} \frac{n^2 + 2ikn + \alpha}{n(2ik + n)} \quad (13)$$

und

$$V(r) = \frac{2\alpha \cdot e^{-r}}{[1 - \alpha \cdot e^{-r}]^2}, \quad \alpha < 1,$$

$$f(k) = 1 + \frac{2\alpha}{1-\alpha} \cdot \frac{1}{2ik+1}, \quad (14)$$

$$f(k, r) = e^{-ikr} \left[1 + \frac{1}{2ik+1} \cdot \frac{2\alpha \cdot e^{-r}}{1 - \alpha \cdot e^{-r}} \right].$$

Das letzte Beispiel zeigt, dass bei passender Wahl der α in (12) sehr wohl nur endlich viele falsche Nullstellen auftreten können.

Auch für „quasiperiodische Potentiale“ kommt man mit Reihenentwicklungen zum Ziel. Es sei z. B.

$$V(r) = \alpha_1 \cdot e^{-\lambda_1 r} + \alpha_2 \cdot e^{-\lambda_2 r} \quad (15)$$

$$\alpha_i \neq 0 \quad \lambda_1/\lambda_2 \text{ irrational.}$$

In diesem Fall setzt man als Lösung von (1) an:

$$f(k, r) = e^{-ikr} \sum_{\mu_1=0}^{\infty} \sum_{\mu_2=0}^{\infty} C_{\mu_1 \mu_2}(k) \cdot e^{-\langle \mu_1 \lambda_1 + \mu_2 \lambda_2 \rangle r} \quad (16)$$

$$C_{00} = 1$$

was zur Rekursion:

$$C_{\mu_1 \mu_2}(k) = \frac{\alpha_1 C_{\mu_1-1, \mu_2} + \alpha_2 C_{\mu_1, \mu_2-1}}{(\mu_1 \lambda_1 + \mu_2 \lambda_2)(2ik + \mu_1 \lambda_1 + \mu_2 \lambda_2)} \quad (17)$$

mit den Randbedingungen:

$$C_{-1, \mu_2} = C_{\mu_1, -1} = 0, \quad C_{00} = 1 \quad (17')$$

führt. Die Rekursion ist lösbar und führt auf eine stark konvergente Reihe für $f(k, r)$, sofern in (17) keiner der Nenner verschwindet. Falsche Nullstellen treten auf in

$$k = -\frac{i}{2}(\mu_1 \lambda_1 + \mu_2 \lambda_2), \quad \mu_1, \mu_2 = 0, 1, 2, \dots; \quad \mu_1^2 + \mu_2^2 > 0.$$

Setzt man etwa $\alpha = 1$, $\lambda_1 = 1$; $\alpha_2 = \varepsilon$, $\lambda_2 = \sqrt{2}$, so ersieht man durch Vergleich mit Beispiel (7), dass die falschen Nullstellen durch das asymptotische Verhalten von $V(r)$ nicht bestimmt sind, denn es ist ja

$$e^{-r} \sim e^{-r} + \varepsilon \cdot e^{-\sqrt{2}r} \quad \text{für } r \rightarrow \infty$$

Weiter werden wir im nächsten Paragraphen ein Verfahren der sukzessiven Approximation angeben, mit welchem man $f(k, r)$ z. B. auch für Potentiale der Gestalt

$$V(r) = \mathfrak{P}_n(r) \cdot e^{-r}, \quad \mathfrak{P}_n(r): \text{Polynom } n\text{-ten Grades} \quad (18)$$

bestimmen kann. Es treten in $k = -(i/2)\mu$, $\mu = 1, 2, \dots$ falsche Nullstellen höherer Ordnung auf.

Desgleichen lässt sich für das Yuhawapotentiale plausibel machen, dass $f(k, r)$ in diesem Fall logarithmische Singularitäten besitzt.

Schliesslich sei noch darauf hingewiesen, dass die Gleichung (1) für jedes k , auch für solche in welchen $f(k, r)$ singularär ist, eine Lösung besitzt, die sich asymptotisch wie e^{-ikr} verhält¹⁾. Diese Verhältnisse sind im Beispiel (7) wohlbekannt. Für $k = (\mu/2)i$ treten an Stelle von $f(k, r)$ im wesentlichen Besselsche Funktionen zweiter Art.

§ 3. Allgemeine Eigenschaften der Funktionen $f(k, r)$.

In diesem Paragraphen machen wir der Bequemlichkeit halber die Voraussetzung, dass $V(r)$ der Ungleichung genüge:

$$|V(r)| < \frac{M}{(r+\varepsilon)^{2+\delta}}, \quad \varepsilon, \delta > 0. \quad (19)$$

Das Auftreten von Singularitäten in $r = 0$ in (1) hängt ja mit den falschen Nullstellen in keiner Weise zusammen²⁾. Man verifiziert aber leicht, dass z. B. die Lösung der Gleichung (I) (siehe unten) durch sukzessive Approximation auch noch anwendbar ist,

wenn für $V(r)$ nur gilt: $|V(r)| < \frac{M}{r(r+\varepsilon)^{1+\delta}}$. Wir führen nun neben $f(k, r)$ noch ein neues Fundamentalsystem wie folgt ein:

$\psi_0(k, r)$ ist bestimmt durch: $\psi_0(k, 0) = 0$, $\psi_0'(k, 0) = 1$

$\psi_1(k, r)$ ist bestimmt durch: $\psi_1(k, 0) = 1$, $\psi_1'(k, 0) = 0$.

Für die verschiedenen Funktionen verifiziert man leicht folgende Integralgleichungen:

$$f(k, r) = e^{-ikr} + \frac{1}{k} \int_r^\infty \sin k(r' - r) V(r') f(k, r') dr' \quad (I)$$

$$\psi_0(k, r) = r + \int_0^r (r - r') [V(r') - k^2] \psi_0(k, r') dr' \quad (II)$$

$$\psi_1(k, r) = 1 + \int_0^r (r - r') [V(r') - k^2] \psi_1(k, r') dr' \quad (III)$$

¹⁾ Dies gilt unter der Voraussetzung, dass sich $V(r)$ asymptotisch in eine Reihe nach $1/r$ entwickeln lässt. W. STERNBERG, Math. Ann. **81**, 119 (1920).

²⁾ Vgl. die Folgerungen aus dem Satz.

Alle 3 Integralgleichungen lassen sich in bestimmten k -Gebieten durch sukzessive Approximation lösen, und zwar:

(I) in $J[k] \leq 0$, indem man setzt:

$$f(k, r) = \sum_{v=0}^{\infty} f_v(k, r); \quad f_0(k, r) = e^{-ikr}$$

$$f_{v+1}(k, r) = \frac{1}{k} \int_r^{\infty} \sin k(r' - r) V(r') f_v(k, r') dr'$$

(II) und (III) in $|k| < \infty$ durch:

$$\psi_i(k, r) = \sum_{v=0}^{\infty} \psi_{i,v}(k, r),$$

$$\psi_{0,0}(k, r) = r \quad \psi_{1,0}(k, r) = 1$$

$$\psi_{i,v+1}(k, r) = \int_0^r (r - r') [V(r') - k^2] \psi_{i,v}(k, r') dr'.$$

Mit (19) weist man leicht nach, dass die Reihen und die daraus durch einmalige und zweimalige Ableitung nach r entstehenden Reihen in jedem endlichen r -Bereich und in jedem abgeschlossenen k -Bereich in den Gebieten: $J[k] < 0$ für I und $|k| < \infty$ für II und III gleichmässig konvergieren.

Daraus folgt die Lösungseigenschaft der eben konstruierten Lösungen und weiter, dass $f(k, r)$ in $J[k] < 0$ für festes r regulär analytisch in k ist und auf der reellen Axe endliche Randwerte annimmt und dass $\psi_0(k, r)$ und $\psi_1(k, r)$ in k ganze Funktionen sind.

Aus der letzten Aussage wollen wir noch eine Folgerung ziehen. Zunächst ist es klar, dass die Auszeichnung des Punktes $r = 0$ in den Anfangsbedingungen zu (II) und (III) zufällig ist. Ebenso ist an den Anfangsbedingungen nur typisch, dass sie nicht von k abhängen. Wir haben so den

*Satz*¹⁾: Ist $\chi(k, r)$ eine Lösung von (1) und ist in einem Punkt r_0 $\chi(k, r_0)$ und $\chi'(k, r_0)$, unabhängig von k , so ist für jedes r $\chi(k, r)$ eine ganze Funktion von k .

Zusatz: Falls $\chi(k, r_0)$ und $\chi'(k, r_0)$ in einem Gebiet G der komplexen k -Ebene regulär sind, so ist $\chi(k, r)$ für jedes r in G regulär in k .

¹⁾ H. POINCARÉ, Acta Math. 4, 215 (1884).

Zum Beweis des Zusatzes beachten wir, dass ein Fundamentalsystem

$$\zeta_0(k, r), \zeta_1(k, r) \quad \text{mit} \quad \zeta_0(k, r_0) = \zeta_1'(k, r_0) = 0; \\ \zeta_0'(k, r_0) = \zeta_1(k, r_0) = 1$$

aus in k ganzen Funktionen besteht. Nun ist

$$\chi(k, r) = \chi(k, r_0) \zeta_1(k, r) + \chi'(k, r_0) \zeta_0(k, r)$$

woraus die Behauptung folgt.

Falls aber in k_0 für ein beliebiges festes r_0 entweder $\chi(k, r_0)$ oder $\chi'(k, r_0)$ singulär ist, so ist in jedem Punkt r entweder $\chi(k, r)$ oder $\chi'(k, r)$ in k_0 singulär.

Wenn wir nun wissen, dass $f(k, r_0)$ und $f'(k, r_0)$ für ein beliebig grosses r_0 in der Umgebung der $+i$ -Axe regulär sind, so können keine falschen Nullstellen auftreten, da dann auch $f(k)$ in der Umgebung der $+i$ -Axe regulär ist. Ist aber für ein k_0 auf der $+i$ -Axe $f(k, r_0)$ oder $f'(k, r_0)$ singulär, so gilt dies auch für $f(k)$ oder $f'(k) = f'(k, 0)$. Es tritt dann im allgemeinen in $-k_0$ eine falsche Nullstelle auf. Eine Ausnahme tritt nur dann auf, wenn $-k_0$ zufällig mit einer richtigen Nullstelle koinzidiert, d. h. wenn $f(-k_0) = 0$ ist. (Vergleiche (21)). Für das Auftreten falscher Nullstellen ist von $V(r)$ nur das Verhalten für $r > r_0$, wo r_0 beliebig gross ist, massgebend. [Mit dem asymptotischen Verhalten von $V(r)$ aber haben die falschen Nullstellen nichts zu tun (Beispiel (15) § 2.)]

Daraus erklärt sich der Erfolg von Abschneideverfahren: wenn man für $r > r_0$ das Potential durch Null ersetzt, können keine falschen Nullstellen auftreten.

Es lässt sich sogar zeigen, dass keine falschen Nullstellen auftreten, wenn für $r > r_0$ $V(r)$ eine rationale Funktion der Gestalt

$$\sum_{\nu=0}^{n-2} a_{\nu} r^{\nu} \bigg/ \sum_{\nu=0}^n b_{\nu} r^{\nu}, \quad b_n \neq 0$$

ist. Mit irgend etwas Physikalischem haben aber derartige Manipulationen nichts zu tun. Deshalb übergehe ich auch den etwas umständlichen Beweis für die letzte Behauptung.

Wesentliche Aussagen ergeben sich aus dem Zusammenhang zwischen $f(k, r)$ und den $\psi_i(k, r)$.

Aus (1) folgt, dass die Wronskysche Determinante für irgendein Paar von Lösungen von r unabhängig ist. Dies gilt im besonderen

von $f(k, r)$ und $f(-k, r)$ und man schliesst aus dem asymptotischen Verhalten leicht, dass:

$$f(k, r) f'(-k, r) - f'(k, r) f(-k, r) = 2ik \quad (20)$$

Daraus aber:

$$f(k) f(-k, r) - f(-k) f(k, r) = 2ik \psi_0(k, r) \quad (21)$$

und

$$f'(-k) f(k, r) - f'(k) f(-k, r) = 2ik \psi_1(k, r) \quad (22)$$

wie man durch Ableiten nach r mit (20) und der Definition von ψ_0 und ψ_1 leicht erkennt. Nach (5) ist

$$\varphi(k, r) = - \frac{2ik}{f(-k)} \psi_0(k, r) \quad (23)$$

und das verschwindet wegen der Regularität von $\psi_0(k, r)$ in k , falls $f(-k)$ unendlich wird. Dies ist aber in den falschen Nullstellen der Fall und umgekehrt: wenn $\varphi(k, r)$ für ein k auf der $-i$ -Axe identisch in r verschwindet, so liegt für dieses k eine falsche Nullstelle vor.

Die falschen Nullstellen sind also gleichwertig mit dem identischen Verschwinden von $\varphi(k, r)$ für gewisse k auf der negativ-imaginären Axe.

In einer falschen Nullstelle k_0 wird zwar $f(-k_0, r)$ unendlich, aber es ist

$$\lim_{k \rightarrow k_0} \frac{f(-k, r)}{f(-k)} = \frac{f(k_0, r)}{f'(k_0)} \quad (24)$$

falls nicht gerade $f(k_0) = 0$ ist. Dieses Zusammenfallen einer richtigen Nullstelle mit einer Singularität von $f(-k, r)$ haben wir aber ausgenommen.

Ist nämlich $f(k_0) = 0$, k_0 aber eine Singularität von $f(-k, r)$, so hat man (22) heranzuziehen. Sicher ist $f'(k_0) \neq 0$ da $f(k_0, r)$ nicht identisch verschwinden kann. Weiter ist $f'(-k_0)$ unendlich da sonst $f(-k, r)$ in k_0 regulär wäre. Demnach folgt:

$$\lim_{k \rightarrow k_0} \frac{f(-k, r)}{f'(-k)} = \frac{f(k_0, r)}{f'(k_0)}. \quad (25)$$

Zu einer eindeutigen Charakterisierung der richtigen Nullstellen durch das asymptotische Verhalten einer im Nullpunkt verschwindenden Lösung von (1): $\tilde{\varphi}(k, r)$, kann man nur gelangen, falls sicher $\tilde{\varphi}(k, r)$ auf der $-i$ -Axe in r nicht identisch verschwinden

kann. Man spaltet für reelle k $\tilde{\varphi}(k, r)$ auf in einlaufende und auslaufende Kugelwellen:

$$\tilde{\varphi}(k, r) \sim a(k) \cdot e^{-ikr} - b(k) \cdot e^{ikr}$$

$$S(k) = \frac{b(k)}{a(k)} \quad (26)$$

$b(k)$ setzt man analytisch fort. Die Nullstellen von $b(k)$ auf der $-i$ -Achse geben Anlass zu stationären Zuständen. Das Nichtverschwinden von $\tilde{\varphi}(k, r)$ lässt sich aber nicht durch allgemeine Forderungen über das asymptotische Verhalten von $\tilde{\varphi}(k, r)$ für reelle k erzwingen.

Ich möchte zum Schluss noch kurz auf einige elementare Eigenschaften der Funktion $f(k)$ zu sprechen kommen, die sich einfach aus (1) und (I) ergeben.

Es sei $J[k] \leq 0$, dann gilt:

- a) $f^*(-k^*) = f(k)$;
- b) wegen der Realität von $\Gamma(r)$ hat (1) nur reelle Eigenwerte, also $f(k)$ nur Nullstellen auf der $-i$ -Axe. In einer solchen Nullstelle $k_0 \neq 0$ gilt:

$$f'(k_0) \cdot \left. \frac{df}{dk} \right|_{k=k_0} = -2k_0 \int_0^\infty |f(k_0, r)|^2 dr.$$

Die Nullstellen sind demnach einfach, da $f'(k_0) \neq 0$ ist;

- c) es ist $\lim_{k \rightarrow \infty} f(k) = 1$.

Durch (6) und die Eigenschaften a) bis c) ist bei bekannten $S(k)$ $f(k)$ nicht eindeutig bestimmt.

Dagegen lässt sich leicht zeigen, dass durch die Kenntnis der Nullstellen von $f(k)$ in $J[k] \leq 0$ $f(k)$ eindeutig bestimmt ist (dabei ist die Kenntnis einer ev. Nullstelle ein $k = 0$ samt ihrer „Vielfachheit“¹⁾ auch erforderlich). Wegen a) bestimmt $S(k)$ nämlich auf der reellen Axe nur die Phase von $f(k)$ resp. den Imaginärteil von $\log f(k)$. Es soll nun neben dem $f(k)$ noch eine zweite Funktion $f_1(k)$ geben, die (6), a), b), c) erfüllt und dieselben Nullstellen hat, wie $f(k)$. Dann ist $f_1(k)/f(k)$ in $J[k] \leq 0$ beschränkt und nirgends Null. $J[\log f_1(k)/f(k)]$ ist also in $J[k] < 0$ eine reguläre Potentialfunktion und in $J[h] \leq 0$ beschränkt. Ausserdem verschwindet sie auf der reellen Axe. Nach einem bekannten Satz verschwindet sie also in der ganzen untern Halbebene. Daraus aber folgt, dass $\operatorname{Re} [\log f_1(k)/f(k)]$ konstant ist und, nach c) den Wert Null hat. Es ist also $f_1(k) = f(k)$.

¹⁾ Eine Nullstelle in $k = 0$ kann ein Verzweigungspunkt sein.

Es stellt sich hier nun die folgende, bisher ungelöste Frage: Man leite aus einem Potential $V(r)$ ein $S(k)$ her. Gibt es dann ein anderes Potential $V_1(r) \neq V(r)$, das zu andern stationären Zuständen führt als $V(r)$, zu dem aber dasselbe $S(k)$ gehört? Nach dem oben Gesagten, würden sich die Funktionen $f(k)$ und $f_1(k)$ unterscheiden.

Es ist möglich, dass eine solche Vieldeutigkeit nicht besteht, dass also $S(k)$ die stationären Zustände eindeutig bestimmt. Nichts deutet aber darauf, dass die Bestimmung der stationären Zustände aus $S(k)$ auf einfache Weise erfolgt.

Zum Schluss möchte ich den Herren Professoren W. PAULI in Zürich, C. MÖLLER und Herrn D. TER HAAR in Kopenhagen für das freundliche Interesse danken, das sie dieser Arbeit entgegengebracht haben.

Zürich, Physikalisches Institut der ETH.

Einfluss der Startphase der Teilchen bei Beschleunigern

von Walter Dällenbach.*)

(5. III. 1947.)

Es handelt sich um die in zwei vorläufigen Mitteilungen³⁾ beschriebenen Beschleuniger. Strahlungsverluste werden nicht berücksichtigt. Bei der ν -ten Beschleunigung sind

$$E_\nu - E_{\nu-1} = eU \cos \Phi_\nu \quad (1)$$

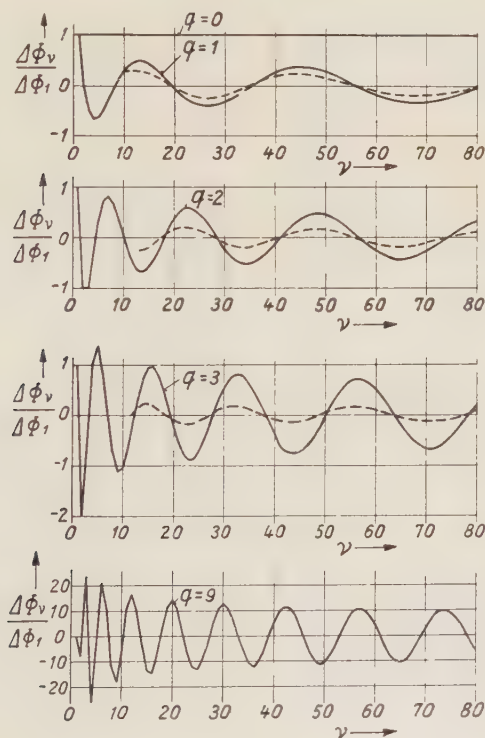


Fig. 1.

der Energiezuwachs und Φ_ν die Phasenverspätung des Teilchens mit der Ladung e gegenüber dem Scheitelwert U der hochfre-

*) Vorgetragen am 19.2.1947 im physikalischen Colloquium der ETH in Zürich.

quenten Wechselspannung. Werden die Laufzeiten über die Beschleunigungsstrecken vernachlässigt und sind die Laufstrecken volle Kreise im magnetischen Führungsfeld mit $B r^n = \text{konstant}$, so gilt

$$\Phi_{\nu+1} - \Phi_\nu = 2\pi \left\{ \frac{E_\nu}{S_\nu} \left[\frac{E_\nu^2 - (mc^2)^2}{S_\nu^2 - (mc^2)^2} \right]^{\frac{1}{1-n}} - 1 \right\} \quad (2)$$

und

$$\frac{r}{r_\nu} = \left[\frac{E_\nu^2 - (mc^2)^2}{S_\nu^2 - (mc^2)^2} \right]^{\frac{1}{1-n}} \quad (3)$$

Darin sind

$$S_\nu = E_0 + \nu e U \cos \Phi_s \quad (4)$$

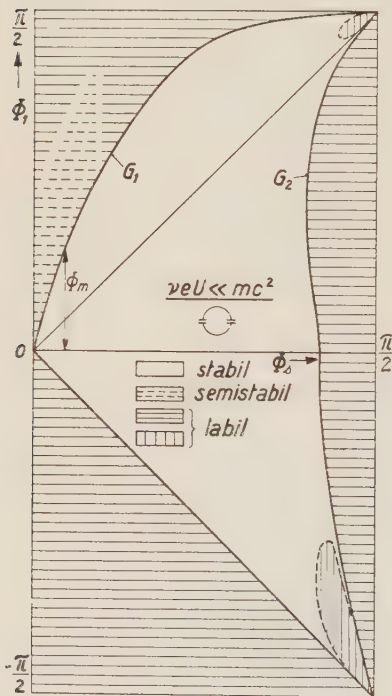


Fig. 2.

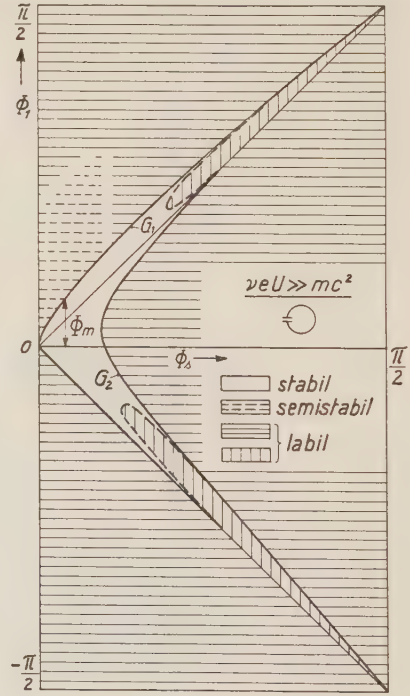


Fig. 3.

die Energie des synchronen Teilchens und r/r_ν das Radienverhältnis der zu den Energien E_ν und S_ν gehörenden stationären Kreisbahnen nach der ν -ten Beschleunigung. Die transversalen Abweichungen von der stationären Kreisbahn werden in einer

späteren Mitteilung betrachtet. Sind die Laufstrecken Halbkreise, so tritt in (2) an Stelle von 2π der Faktor π .

Aus $n, eU, \Phi_s, E_0, \Phi_1$ folgen vermöge (1), (2) rekursiv $E_1, \Phi_2, E_2, \Phi_3, \dots$

Mit $n = 1/2$ und $\Phi_v = \Phi_s + \Delta \Phi_v$ erhält man in erster Näherung vermöge (1), (2) zur rekursiven Berechnung der $\Delta \Phi_v$ bei gegebenem $\Delta \Phi_1$

$$\left. \begin{aligned} & \frac{S_v}{1 + \frac{1}{1 - \left(\frac{mc^2}{S_v}\right)^2}} [\Delta \Phi_{v+1} - \Delta \Phi_v] - \frac{S_{v-1}}{1 + \frac{1}{1 - \left(\frac{mc^2}{S_{v-1}}\right)^2}} [\Delta \Phi_v - \Delta \Phi_{v-1}] \\ & + 2\pi eU \sin \Phi_s \Delta \Phi_v = 0, \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

wobei $\Delta \Phi_0 = 0$. Aus (5) wird speziell für „langsame“ ($v eU \ll mc^2$) Teilchen, aber auch für „schnelle“ ($v eU \gg mc^2$) Teilchen

$$v (\Delta \Phi_{v+1} - \Delta \Phi_v) - (v - 1) (\Delta \Phi_v - \Delta \Phi_{v-1}) + q \Delta \Phi_v = 0. \quad (6)$$

Darin ist

$$\left. \begin{aligned} q &= \pi \cdot \operatorname{tg} \Phi_s \text{ für } 1 \text{ Beschleunigung/Umlauf} \\ q &= \pi/2 \cdot \operatorname{tg} \Phi_s \text{ „ } 2 \text{ „ „ „} \\ q &= 4 \pi \cdot \operatorname{tg} \Phi_s \text{ „ } 1 \text{ „ „ „} \\ q &= 2 \pi \cdot \operatorname{tg} \Phi_s \text{ „ } 2 \text{ „ „ „} \end{aligned} \right\} \begin{aligned} & \text{und } v eU \ll mc^2 \\ & \text{und } v eU \gg mc^2 \end{aligned}$$

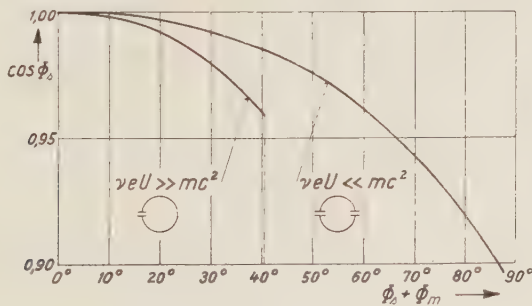


Fig. 4.

Für grosse v möge statt (6)

$$\frac{d}{dv} \left[v \frac{d\Delta \Phi(v)}{dv} \right] + q \Delta \Phi(v) = 0 \quad (7)$$

gesetzt werden mit der Lösung

$$\Delta \Phi(v) = \Delta \Phi_1 J_0 \{ 2 \sqrt{qv} \}. \quad (8)$$

In Fig. 1 sind für $q = 1; 2; 3; 9$ $\Delta \Phi_\nu / \Delta \Phi_1$ nach (6) — ausgezogene Kurve — und $\Delta \Phi(\nu) / \Delta \Phi_1$ nach (8) — gestrichelte Kurve — dargestellt. Für die Beurteilung der Stabilität einer Teilchenbahn ist also die Differentialgleichung (7) nicht brauchbar.

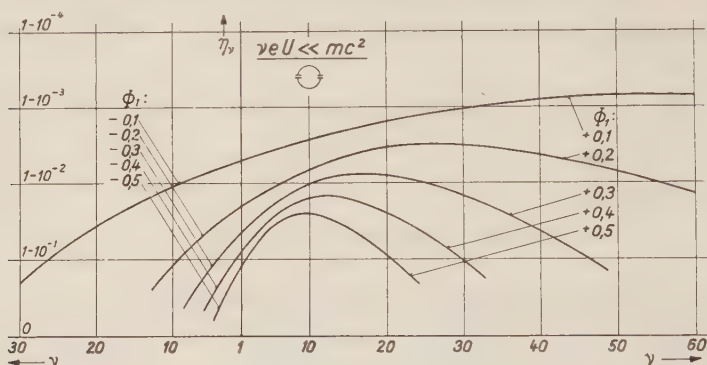


Fig. 5.

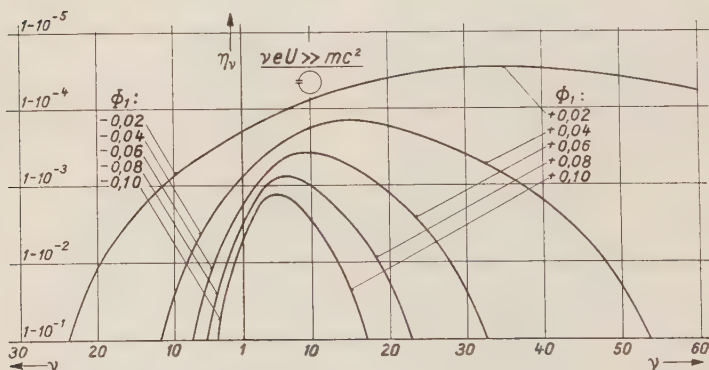


Fig. 6.

In Fig. 2 und 3 sind nun im rechteckigen Zustandsbereich

$$0 \leq \Phi_s < \pi/2$$

$$-\pi/2 < \Phi_1 < \pi/2$$

Gebiete mit allgemein nach den Differenzengleichungen (1), (2) rekursiv gerechneten labilen, bzw. stabilen Teilchenbahnen unterschieden und zwar für die 2 Sonderfälle

- 1) $n = 1/2$; $E_0 = m c^2$; $\nu e U \ll m c^2$; 2 Beschleunigungen/Umlauf.
- 2) $n = 1/2$; $E_0 = m c^2$; $\nu e U \gg m c^2$; 1 Beschleunigung/Umlauf.

Die Grenze G_1 rührt davon her, dass ein Teilchen mit der Startphase $\Phi_1 > \Phi_m > \Phi_s$ über $-\Phi_s$ nach $\Phi_v < -\pi/2$ abwandert und ausser Tritt fällt. Die Grenze G_2 ist darauf zurückzuführen, dass es für Φ_s genügend nahe an $\pi/2$ Teilchen $\Phi_1 < \Phi_s$ gibt, die nach 2 oder mehr Beschleunigungen nach $\Phi_v > \pi/2$ gelangen und bis auf 0 abgebremst werden. In den durch gestrichelte Grenzen umrandeten kleinen Gebieten liegen stabile und labile Bereiche in um so grösserer Zahl und um so dichter nebeneinander, je mehr man sich den beiden Punkten $\{\Phi_s = \pi/2; \Phi_1 = \pm \pi/2\}$ nähert.

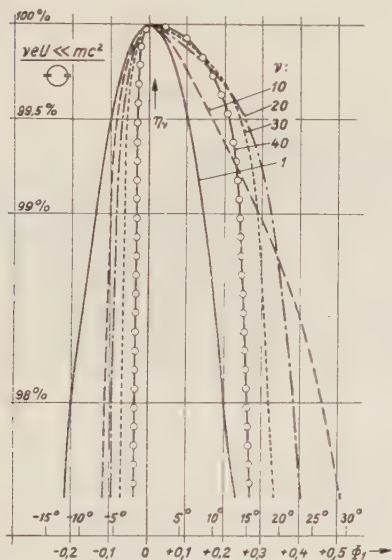


Fig. 7.

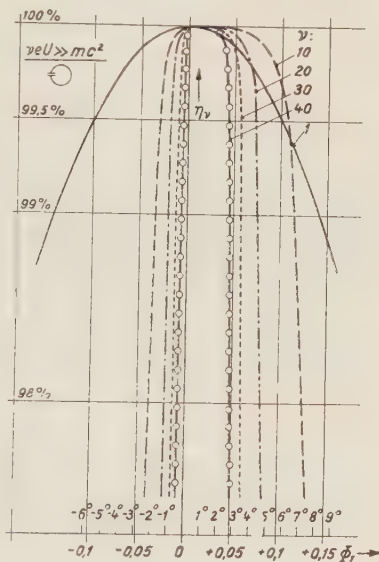


Fig. 8.

Entnimmt man Fig. 2 und 3 Φ_m als Funktion von Φ_s , so ist $\cos \Phi_s$ wie in Fig. 4 als Funktion von $\Phi_s + \Phi_m$ aufgetragen die vom Standpunkt der Phasenstabilität mögliche Stromspannungskennlinie einer Maschine mit grosser Zahl ν von Beschleunigungen. Massgebend dafür, wie weit diese ideale Kennlinie ausgenützt werden kann, sind erstens die mit Rücksicht auf die Konstruktion zulässigen Radienverhältnisse nach (3) und zweitens bei kleinerer Zahl ν von Beschleunigungen die Anforderungen an die Homogenität des austretenden Strahls.

Bei $\Phi_s = 0$ sind alle Teilchen $\Phi_1 \neq 0$ labil. Für diesen speziellen Wert der Startphase Φ_s wurde die spezifische Teilchenenergie

$$\eta_\nu = \frac{E_\nu - mc^2}{S_\nu - mc^2}$$

in den oben betrachteten zwei Sonderfällen nach (1), (2) berechnet. Die Ergebnisse, nämlich i_ν in Funktion von ν mit positiven und negativen Werten von Φ_1 in Bogenmass als Parameter sind in Fig. 5 und 6 dargestellt. Sie zeigen das semistabile Verhalten der Teilchen $\Phi_1 > 0$. In einer andern Darstellung dieser Ergebnisse geben Fig. 7 und 8 die Energieverteilung i_ν im Strahl in Abhängigkeit von der Startphase Φ_1 und mit der Zahl ν der Beschleunigungen als Parameter.

Es ist mir eine Freude, Herrn ISAAC HEISELBECK zu danken für seine Hilfe bei den zur Bestimmung der Figuren erforderlichen numerischen Rechnungen.

Nachtrag bei der Korrektur. Am 4. 7. 1947 erhielt ich Kenntnis von einer in hiesigen Bibliotheken nicht vorhandenen Veröffentlichung

M. RABINOVICH, J. Phys. USSR, **10**, 523 (1946),

in welcher die Phasenverhältnisse beim Synchrotron untersucht sind. RABINOVICH findet für gegenüber der Phase des synchronen Teilchens kleine Phasenabweichungen lineare Differenzgleichungen (16), welche mit meinen Differenzgleichungen (6) im wesentlichen übereinstimmen. Von diesen linearen Differenzgleichungen gibt er in zwei speziellen Fällen Lösungen an. In vorliegender Arbeit sind die für gegenüber der Phase des synchronen Teilchens endliche Phasenabweichungen geltenden nicht linearen Differenzgleichungen numerisch gelöst und die praktisch interessierenden Ergebnisse in den Figuren 2 bis 8 dargestellt.

Literatur:

¹⁾ V. VEKSLER, J. Phys. USSR **9**, 153 (1945).

²⁾ E. McMILLAN, Phys. Rev. **68**, 143 (1945).

³⁾ W. DÄLLENBACH, Bulletin SEV **37**, 699 (1946); Exper. II, 490 (1946).

Das seignetteelektrische Gitter vom KH_2PO_4 -Typus und das Verhalten der NH_4 -Rotationsumwandlung bei $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$ -Mischkristallen

von B. Matthias, W. Merz und P. Scherrer.

(17. IV. 1947.)

Zusammenfassung: Es werden die beiden Gruppen der Seignetteelektrika, das leichte und schwere Seignettesalz einerseits, und die Kristalle vom KH_2PO_4 -Typus andererseits, einander gegenübergestellt. Da bei letzteren neben dem KH_2PO_4 , KD_2PO_4 und KH_2AsO_4 auch das RbH_2PO_4 und RbH_2AsO_4 wie auch ihre Mischkristalle als seignetteelektrisch erkannt werden, wird die Vermutung ausgesprochen, dass alle Kristalle vom XH_2PO_4 -Typus ($\text{X} = \text{K}, \text{NH}_4, \text{Rb}, \text{Cs}, \text{Tl}$) seignetteelektrische Eigenschaften aufweisen, sofern sie, wie das KH_2PO_4 , tetragonal hemiedrisch kristallisieren; ganz im Gegensatz zum Seignettesalz, wo sowohl die zu ihm isomorphen Tl -, NH_4 - und Rb -Salze als auch ihre Mischkristalle keinerlei dielektrische Anomalien aufweisen.

Eine Sonderstellung nimmt aber das $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ ein, wo das Kation keine Kugelsymmetrie aufweist. Infolge der Wechselwirkung zwischen den NH_4 -Gruppen tritt bei 148°K die NH_4 -Rotationsumwandlung auf und der Kristall zerspringt, womit die Ausbildung der Seignetteelektrizität verunmöglicht wird.

Es werden die dielektrischen Eigenschaften von $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ und seiner Mischkristalle $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$ untersucht. Die Einlagerung von Tl^+ -Ionen verursacht grosse Verschiebungen der NH_4 -Umwandlungstemperatur, wobei für hohe Tl -Prozentsätze keine mechanische Zerstörung der Kristalle mehr auftritt. Die Umwandlung wird als eine solche von höherer Art erkannt.

Auch der Charakter der Temperaturabhängigkeit für piezoelektrisch erregte Resonanzfrequenzen bei Platten, die $\perp c$ geschnitten sind, deutet beim $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ und seinen Mischkristallen auf eine verhinderte Seignetteelektrizität hin.

Die Einlagerung von Tl^+ -Ionen hat eine starke Änderung der Piezomoduln d_{36} und d_{14} und ebenso des Molvolumens zur Folge, was der starken Polarisierbarkeit des Tl^+ -Ions zugeschrieben werden kann.

Es wird versucht aus der Änderung der Gitterkonstanten und der damit gekoppelten Änderung der Umwandlungstemperatur in Funktion des Tl -Gehaltes auf den Charakter der Kräfte zwischen den NH_4^+ -Ionen zu schliessen. Dabei ergibt sich die Wahrscheinlichkeit einer anschaulichen Deutung des Mechanismus beim $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ am Umwandlungspunkt, und es wird ein Vergleich mit dem Verhalten der Seignetteelektrika aufgestellt.

I. Einleitung.

Zu Beginn dieser Arbeit soll zuerst ein kurzer Überblick über das dielektrische und piezoelektrische Verhalten aller Phosphate vom XH_2PO_4 -Typus und der Mischkristalle (X, Y) H_2PO_4 gegeben werden. Dabei bedeuten X und Y die positiv einwertigen Ionen Na^+ , K^+ , Rb^+ , Cs^+ , NH_4^+ und Tl^+ . Später werden wir dann speziell auf die $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$ Mischreihe eingehen, da sich bei diesen Mischkristallen ganz andere Verhältnisse zeigen, welche uns einen Beitrag zum Verständnis der NH_4 -Rotationsumwandlung beim $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ geben werden.

Als seignetteelektrisch werden solche Substanzen bezeichnet, die in einem bestimmten Temperaturintervall eine spontane elektrische Polarisation aufweisen. Bis anhin waren nur 5 solcher Verbindungen bekannt, nämlich:*)

- a) Das leichte und schwere Seignettesalz, $\text{KNaC}_4\text{H}_4\text{O}_6 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ und $\text{KNaC}_4\text{H}_2\text{D}_2\text{O}_6 \cdot 4\text{D}_2\text{O}$.
- b) KH_2PO_4 , KD_2PO_4 , KH_2AsO_4 .

Zwischen den organischen Seignetteelektrika, den beiden Seignettesalzen einerseits, und den anorganischen Seignetteelektrika KH_2PO_4 , KD_2PO_4 , KH_2AsO_4 andererseits, bestehen verschiedene prinzipielle Unterschiede. So erfolgt das Auftreten der spontanen Polarisation bei ganz anderen Temperaturen, wobei das seignetteelektrische Gebiet bei den Seignettesalzen durch 2 Curiepunkte¹⁾ nach oben und unten begrenzt ist, währenddem die 3 anorganischen Salze je nur 1 (oberen) Curiepunkt²⁾³⁾ besitzen.

Wesentlich anders verhalten sich ferner die beiden Gruppen in der Stabilität der seignetteelektrischen Eigenschaften bezüglich Gitteränderungen. So ist das seignetteelektrische Gebiet beim Seignettesalz sehr eng (ca. -20° bis ca. $+20^\circ$) und das Auftreten der spontanen Polarisation kann durch geringe Störungen des Gitters stark beeinflusst oder sogar ganz verhindert werden. So konnten Ereimejeff, Kobeko und Kurtschatoff⁴⁾ zeigen, dass Mischkristalle von Seignettesalz mit nur einigen Prozenten von Natriumthallotartrat-Tetrahydrat $\text{NaTlC}_4\text{H}_4\text{O}_6 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ oder Natriumrubidiumtartrat-Tetrahydrat $\text{NaRbC}_4\text{H}_4\text{O}_6 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ihre seignetteelektrischen Eigenschaften verlieren. Ein etwas anderes Verhalten trifft man bei Mischungen von Seignettesalz mit Natriumammoniumtartrat-Tetrahydrat $\text{NaNH}_4\text{C}_4\text{H}_4\text{O}_6 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$. Auch hier wird die Seignetteelektrizität stark gestört, bei höheren Prozentsätzen

*) Auf das in letzter Zeit bekanntgewordene und seignetteelektrische Eigenschaften aufweisende BaTiO_3 wird in dieser Arbeit nicht eingegangen.

von $\text{NaNH}_4\text{C}_4\text{H}_4\text{O}_6 \cdot 4 \text{H}_2\text{O}$ tritt dann aber nach KURTSCHATOFF und EREMEJEFF^{5) 6)} wieder Seignetteelektrizität auf, wobei sich aber das Temperaturgebiet der spontanen Polarisierung sehr stark nach unten verschiebt.

Wesentlich ist aber, dass die dem Seignettesalz vollständig isomorphen 3 organischen Verbindungen $\text{NaRbC}_4\text{H}_4\text{O}_6 \cdot 4 \text{H}_2\text{O}$, $\text{NaTlC}_4\text{H}_4\text{O}_6 \cdot 4 \text{H}_2\text{O}$ und $\text{NaNH}_4\text{C}_4\text{H}_4\text{O}_6 \cdot 4 \text{H}_2\text{O}$ absolut keinen anomalen Verlauf der Dielektrizitätskonstanten (DK) aufweisen.

Wir sind nun zu der Auffassung gekommen, dass im Gegensatz zum Seignettesalz, die 3 anorganischen Kristalle auf Gitterstörungen viel weniger empfindlich sind, indem bei Bildung von Mischkristallen die charakteristischen dielektrischen Anomalien erhalten bleiben. Wir glauben sogar, dass sämtliche einbasischen Phosphate, die in der Kristallklasse des KH_2PO_4 kristallisieren, mit Ausnahme des $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$, Seignetteelektrizität zeigen. Eine Aufgabe dieser Arbeit ist es, zu untersuchen, wie andere tetragonale Kristalle vom XH_2PO_4 -Typus sich verhalten. Wir müssen also das K^+ -Ion durch andere einwertig positive Ionen zu ersetzen versuchen. Eine wesentliche Rolle spielt dabei der Ionenradius derselben, sodass hier die Werte zusammengestellt seien:

Na^+	K^+	Rb^+	Cs^+	Tl^+	NH_4^+
0,98	1,33	1,49	1,65	1,49	1,43 Å.

a) RbH_2PO_4 und RbH_2AsO_4 .

RbH_2PO_4 : Wie wir schon früher⁷⁾ mitteilten, wird RbH_2PO_4 in der Literatur^{8) 9)} als optisch zweiachsige Substanz beschrieben, ähnlich wie das entsprechende Cäsiumphosphat CsH_2PO_4 . Bei der näheren Untersuchung hat sich nun aber gezeigt, dass es möglich ist das RbH_2PO_4 auch in der tetragonalen Modifikation zu erhalten, sofern man die stoechiometrisch zusammengesetzte Lösung mit einem tetragonalen KH_2PO_4 - oder $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ -Keim impft.

Die Messung der DK. hat ergeben, dass das tetragonale RbH_2PO_4 seignetteelektrisch in der *c*-Richtung ist, und sich auch sonst ganz analog dem KH_2PO_4 verhält. (Fig. 1.) Provisorische Messungen an Pulver und Einkristall ergaben den Curiepunkt bei ca. $\Theta = 146^\circ \text{K}$, was einer Verschiebung von 23° gegenüber dem KH_2PO_4 zu höherer Temperatur gleichkommt.

RbH_2AsO_4 : Analog wie beim RbH_2PO_4 kann durch Impfung mit einem tetragonalen Keim auch das RbH_2AsO_4 tetragonal kristallisiert werden. Auch dieses Salz zeigt, wie provisorische Messungen

ergeben haben, Seignetteelektrizität in der c -Richtung mit dem Curiepunkt bei ca. $\Theta = 111^\circ \text{ K}$ (Fig. 1). Hier beträgt die Verschiebung gegenüber dem KH_2AsO_4 14° .

Bei der Ersetzung des K^+ -Ions durch ein Rb^+ -Ion bestätigt sich also unsere Annahme, dass das tetragonale Gitter die Seignetteelektrizität bedingt.

b) NaH_2PO_4 , CsH_2PO_4 , TH_2PO_4 .

NaH_2PO_4 : Die chemisch-physikalischen Eigenschaften des Na-Salzes sind ganz andere als diejenigen der entsprechenden K- und Rb-Salze. Je nach dem Temperaturgebiet, in dem sie hergestellt werden, kristallisieren die Natriumverbindungen mit einem andern Kristallwassergehalt:

Nach GMELIN¹⁰⁾ ergibt sich:

$\text{NaH}_2\text{PO}_4 \cdot 4 \text{ H}_2\text{O}$	um -20° C
$\text{NaH}_2\text{PO}_4 \cdot 2 \text{ H}_2\text{O}$	bis $40,8^\circ \text{ C}$
$\text{NaH}_2\text{PO}_4 \cdot 1 \text{ H}_2\text{O}$	von $40,8^\circ$ bis $57,4^\circ \text{ C}$
NaH_2PO_4	über $57,4^\circ \text{ C}$.

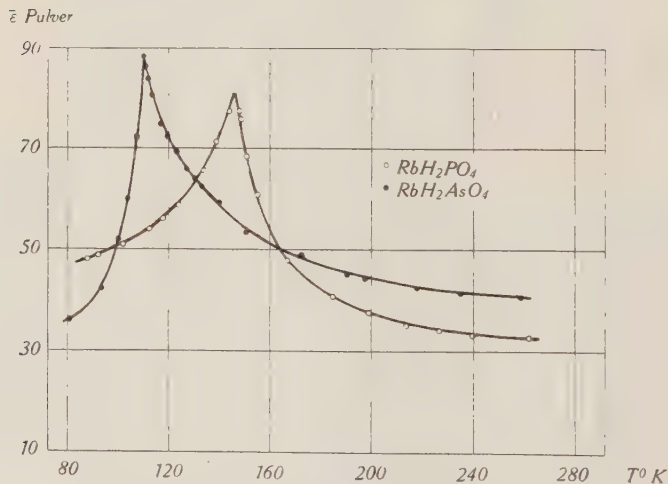


Fig. 1.

Temperaturabhängigkeit der DK. von RbH_2PO_4 und RbH_2AsO_4 .

Nach Versuchen von Bärtschi¹¹⁾ liess keines der Salze sich im wasserfreien Zustand im System des KH_2PO_4 kristallisieren und die DK. zeigt dementsprechend keinerlei Anomalien.

CsH_2PO_4 : Im Gegensatz zum RbH_2PO_4 gelang es uns nicht das CsH_2PO_4 , welches optisch zweiachsig kristallisiert, auf irgendeine Weise in tetragonaler Modifikation zu erhalten. Es scheint, dass der Ionenradius des Cs^+ -Ions schon zu gross ist, so dass das tetragonale Gitter für das CsH_2PO_4 nicht mehr in Frage kommen kann. Der Verlauf der DK. beim Cs-Salz ist denn auch dementsprechend normal.

TlH_2PO_4 : TlH_2PO_4 kristallisiert monoklin prismatisch. Obwohl der Ionenradius vom Tl^+ genau gleich gross ist wie derjenige vom Rb^+ gelang es leider auch hier nicht, die tetragonale Modifikation zu erzwingen. Der Grund ist wahrscheinlich darin zu suchen, dass das Tl, welches bekannterweise eine besondere Stellung im periodischen System einnimmt, doch andere Eigenschaften besitzt, als die Elementé der Alkalireihe. So ist die Polarisierbarkeit des Tl^+ -Ions viel grösser als diejenige vom K^+ - und Rb^+ -Ion, was wir später noch eingehender behandeln werden. Die DK. zeigt, obwohl sie an sich ziemlich gross ist, keine Anomalie.

Bei den Na-, Cs-, Tl-Phosphaten war es also bisher nicht möglich tetragonale Kristalle zu erhalten und der Verlauf der DK. bleibt, unsern Erwartungen entsprechend, normal.

c) KH_2PO_4 -Mischkristalle.

Wir haben die Mischkristalle von KH_2PO_4 mit Rb-, Cs-, (NH_4) -, und $\text{Tl-H}_2\text{PO}_4$ qualitativ untersucht. Es hat sich dabei gezeigt, dass immer dann, wenn trotz der Beimischung von fremden Salzen, klare tetragonale Exemplare entstehen, die Seignettelektrizität erhalten bleibt. Der Curiepunkt wird dabei aber je nach der Menge des Zusatzes mehr oder weniger nach oben oder unten verschoben¹²⁾. Die Messungen ergeben in eindeutiger Weise, dass die Seignettelektrizität beim KH_2PO_4 durch Mischkristallbildung nicht beeinträchtigt wird, solange der Kristallhabitus erhalten bleibt, so dass die besondere Stabilität des Gitters vom KH_2PO_4 -Typ bezüglich Seignettelektrizität, im Gegensatz zu den Seignettesalzen, unterstrichen wird.

d) $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ und seine Mischkristalle.

Innerhalb der Gruppe der XH_2PO_4 -Kristalle nimmt das $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ eine Sonderstellung ein, denn hier ist das massgebende einwertige positive Ion, das NH_4^+ , nicht kugelsymmetrisch, sondern ein Tetraeder, welches Anlass zu einem Quadrupolmoment gibt. Die DK. vom $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ ist bei Zimmertemperatur sehr gross,

in der a -Richtung $\varepsilon_a \cong 56$, in der c -Richtung $\varepsilon_c \cong 15$; sie steigt mit fallender Temperatur stark an²⁾ (Fig. 2). Ebenso nimmt der Piezomodul d_{36} stark zu¹³⁾ (Fig. 3).

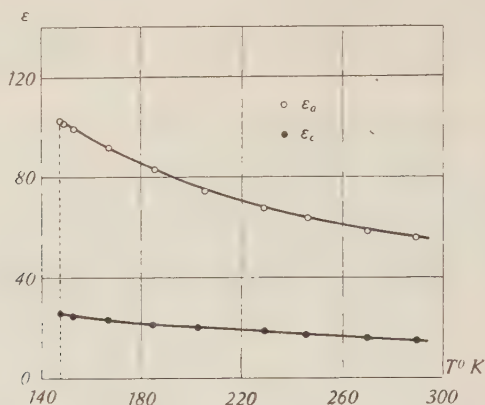


Fig. 2.

Temperaturabhängigkeit der DK. von $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$

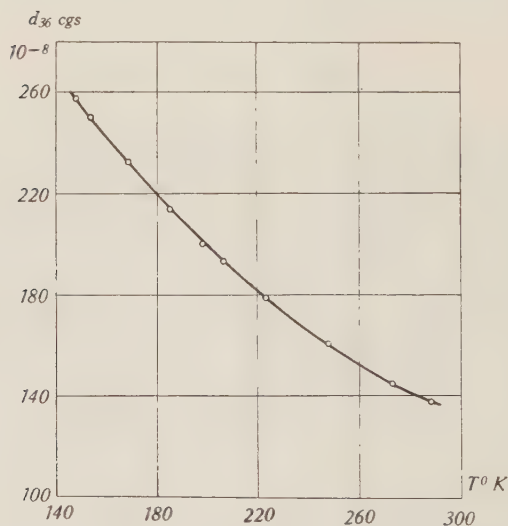


Fig. 3.

Temperaturabhängigkeit des Piezomoduls d_{36} von $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$.

Der Verlauf der DK. und des Piezomoduls zeigen also unverkennbar eine starke Analogie zu demjenigen bei KH_2PO_4 , so dass man zur Annahme kommt, dass $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ bei tiefer Temperatur

seignetteelektrisch werden sollte. Dies um so mehr, als das Salz ja zum KH_2PO_4 isomorph ist. Wie bereits Busch²⁾ feststellte tritt aber bei 148°K eine Umwandlung auf, bei welcher der Kristall plötzlich mechanisch zerstört wird und zerfällt. Dabei fällt die DK. steil ab und die spezifische Wärme zeigt nach Messungen von BANTLE³⁾ und STEPHENSON¹⁴⁾ eine Anomalie.

Es scheint demnach so zu sein, dass aus dem Verhalten der DK. und des Piezomoduls eine bei tieferer Temperatur stattfindende spontane Polarisation erwartet werden kann, die aber durch eine schon vorher eintretende NH_4 -Rotationsumwandlung bei 148°K verhindert wird. Da aber der ganze Umwandlungsmechanismus beim $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ und die Frage nach einer möglichen Seignetteelektrizität noch ziemlich unklar schienen, war es interessant das Verhalten dieses Vertreters der Phosphatgruppe, vor allem die Umwandlung, genauer zu untersuchen.

Deshalb wurde versucht, die NH_4^+ -Ionen im Kristall zum Teil durch Tl^+ -Ionen zu ersetzen, denn damit sollte die Wechselwirkung der NH_4 -Gruppen aufeinander verändert und damit auch die NH_4 -Rotationsumwandlung gestört oder sogar verhindert werden. Tl wurde deshalb gewählt, weil es neben Rb den geeignetsten Ionenradius für den Einbau in das $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ Gitter besitzt, und weil es eine bekannte Tatsache ist, dass NH_4 - und Tl-Phosphat Mischkristalle bilden.

Wie die ersten Messungen¹⁵⁾ schon gezeigt haben, treten bei den $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$ Mischkristallen ganz andere dielektrische und piezoelektrische Eigenschaften auf. Der folgende Teil dieser Arbeit ist daher ganz der Untersuchung der $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$ -Mischreihe gewidmet; es wird sich zeigen, dass die Messungen einen interessanten Einblick in das Wesen der Seignetteelektrizität und der NH_4 -Rotationsumwandlung geben.

II. Zucht der Mischkristalle.

$(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ kristallisiert tetragonal hemiedrisch im gleichen Habitus wie das seignetteelektrische KH_2PO_4 . Das Kristallsystem von TlH_2PO_4 hingegen ist monoklin prismatisch und die Kristalle bilden sich entweder in langen voluminösen Nadeln oder in tafelförmigen Plättchen aus. Nach den oben dargelegten Gründen interessieren uns nur tetragonale Mischkristalle von $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$.

Nach einer Mitteilung von Rammelsberg¹⁶⁾ ist es möglich $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ und TlH_2PO_4 in tetragonalen Mischkristallen zu

züchten und als maximales Mischungsverhältnis wird $2/3$ Mol $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ zu $1/3$ Mol TiH_2PO_4 angegeben.

Bei den Versuchen zeigte sich, dass nur ein Keim, der prozentual annähernd so viel Ti enthielt wie die Lösung, in die er gebracht wurde, Erfolg auf Wachstum hatte. Es war deshalb notwendig, stufenweise zu höheren Ti-Prozentsätzen fortzuschreiten, wobei dann die Einkristalle sich gut entwickelten.

Diese schrittweise Steigerung des Ti-Gehaltes ging sehr gut bis zu ca. 34 Molprozenten Ti, d. h. dem Wert, der von Rammelsberg als maximaler Ti-Gehalt genannt wurde. Bei noch höheren Prozentsätzen an Ti bildete sich leicht, trotz tetragonalem Keim, ein Bodenkörper in monokliner Modifikation aus, der aus schönen spitzen Nadeln oder dünnen Plättchen bestand. Nachdem eine solche Lösung jedoch mehrere Tage gelagert worden war, konnte eine Modifikationsänderung in dem Sinne beobachtet werden, dass die monoklinen Nadeln sukzessive verschwanden und sich dafür die tetragonalen Keime vergrösserten. Dabei zeigte sich, dass die tetragonale Modifikation die stabile ist, die um so mehr begünstigt wird, je grösser die Acidität der Lösung ist und je tiefer die Temperatur liegt. Diese Erscheinung der Modifikationsänderung entspricht ganz derjenigen, die UBBELOHDE und WOODWARD¹⁷⁾ beim schweren Kaliumphosphat, dem KD_2PO_4 , und wir, wie wir in einer früheren Mitteilung erwähnt haben⁷⁾, beim RbH_2PO_4 bemerkt haben.

Trotz allen Bemühungen gelang es uns leider nicht, einen reinen TiH_2PO_4 -Kristall in tetragonaler Modifikation zu erhalten oder wenigstens einen so hochprozentigen tetragonalen Mischkristall zu züchten, dass keine NiH_4 -Rotationsumwandlung mehr auftritt. Da oberhalb ca. 35% Ti die Kristalle, so weit wir feststellen konnten, kein anderes Verhalten zeigten, untersuchten wir vor allem die Mischkristalle bis zu ca. 35% Ti.

Die Analyse der Mischkristalle auf ihren Ti-Gehalt wurde durch Fällungen mit K_2CrO_4 oder mit KJ durchgeführt.

III. Experimentelles und Mess-Ergebnisse an $(\text{NH}_4, \text{Ti})\text{H}_2\text{PO}_4$.

a) Messung der Dielektrizitätskonstanten (DK.).

Apparatur:

Zur Messung der DK. wurde eine Kapazitätsmessbrücke nach SELINGER benutzt, deren Hauptmessbereich sich von 20—700 pF erstreckte und welche eine Messgenauigkeit der Kapazität von ca. 0,5% ermöglichte. Die zur Messung notwendige Wechselspan-

nung lieferte ein eingebauter Generator der Frequenz 800 Hz., wobei die Ausgangsspannung reguliert werden konnte bis zu einem Maximalwert von ca. 150 Volt. Der ursprünglich vorhandene Kopfhörer zur Feststellung des Brückengleichgewichtes wurde durch ein magisches Auge mit vorgeschaltetem Verstärker ersetzt. Die näheren Angaben über die Messbrücke sind der Fig. 4 zu entnehmen.

Die DK. wurde nur an völlig fehlerfreien klaren Kristallplatten gemessen, deren Flächen mindestens $0,25 \text{ cm}^2$ und deren Dicken 0,5 bis 1,0 mm betrugen. Um gute Kontakte und damit reproduzierbare Resultate zu erhalten, wurden die Kristalloberflächen mit einer im Vakuum aufgedampften Silber- oder Goldschicht versehen.

Der Thermostat zur Messung der Kristalle bis zur Temperatur des flüssigen Stickstoffes war in der üblichen Anordnung gebaut. In das äussere der beiden Dewargefässe konnte flüssiger Stickstoff

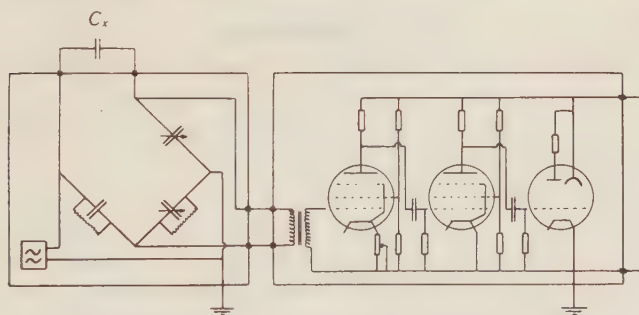


Fig. 4.

geleitet werden, währenddem das innere Gefäss die Kühlflüssigkeit, ein Pentan-Butangemisch enthielt. Ferner waren im innern Dewargefäss eine Heizspirale und ein Rührwerk montiert. Um ein bequemes Messen zu erlauben, wurde ein Messtopf konstruiert, der durch Betätigung eines Umschalters die gleichzeitige Messung von 5 Kristallen ermöglichte. Dies hatte den Vorteil, dass sehr viel Zeit gespart werden konnte und dass durch Vergleich der 5 Kristalle die relativen Ergebnisse sehr viel besser wurden. Die beiden Messkontakte waren gegenüber dem Topf isoliert ausgeführt, so dass durch Erdung desselben alle störenden Einflüsse eliminiert werden konnten. Die Temperaturmessung im Topf wurde durch Kompensation der Thermospannung eines Kupfer-Konstantan-Thermoelementes vorgenommen. Die Stabilisierung der Temperatur des

Bades erfolgte, wie üblich, über eine automatische Toulonschaltung³⁾, die durch ein Kupfer-Konstantan-Thermoelement gesteuert wurde.

Messungen:

Der Verlauf der DK. an $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ wurde oberhalb des Umwandlungspunktes von BUSCH²⁾ gemessen (Fig. 2). In Ergänzung zu dieser Messung war es aber besonders interessant zu untersuchen, wie die DK. sich unterhalb des Umwandlungspunktes verhalten würde. Da der Kristall bei der Rotationsumwandlung aber mechanisch zerstört wird, haben wir, um ein Auseinanderbröckeln zu verhindern, die Platten mit dünnen Zinnfolien beklebt, nachdem sie vorher auf die übliche Weise versilbert worden waren.

Es hat sich nun gezeigt, dass die DK. beim Umwandlungspunkt innerhalb einiger Zehntelgrade auf ganz kleine Werte abfällt, um

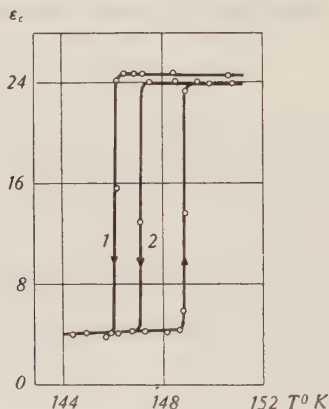


Fig. 5.

DK. ϵ_c von $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ beim Umwandlungspunkt.

beim Wiedererwärmen fast die ursprüngliche Höhe wieder zu erreichen (Fig. 5). Der Betrag des Abfalles nimmt dabei ganz bedeutende Werte an. Diesen steilen Abfall der DK. beim Umwandlungspunkt haben wir dem Zusammenwirken von 2 Ursachen zuzuschreiben:

1. der eigentlichen NH_4 -Rotationsumwandlung;
2. der dabei auftretenden mechanischen Zerstörung.

Die NH_4 -Umwandlung, d. h. die Temperatur, wo die freie Einstellmöglichkeit der NH_4 -Gruppen verhindert wird, spielt aber weit aus die Hauptrolle und nur die Tatsache, dass bei der Erwärmung

die DK. ihren früheren Wert nicht mehr ganz erreicht ist den infolge der Zerstörung auftretenden Luftspalten zuzuschreiben. Unterhalb der Umwandlung bleibt die DK. bis zur Temperatur von ca. 80°K klein bei leichter Abnahme.

Interessant bei der Umwandlung ist das Auftreten einer thermischen Hysteresis, indem der Abfall der DK. beim Abkühlen immer bei tieferer Temperatur erfolgt, als der Anstieg bei der Erwärmung. Es hat sich aber gezeigt, dass der Abfall bei bereits zerstörten Kristallen oder am Pulver stets bei etwas höheren Temperaturen erfolgt als bei noch ganzen Kristallen, was zu folgenden Vermutungen Anlass gibt: Der Abfall der DK. erfolgt bei erstmaliger Abkühlung etwas später, da eine innere mechanische Spannung, eventuell piezoelektrischer Natur, dem Kristall gewisse Hemmungen entgegensetzt, die beim nicht mehr kompakten Kristalle kleiner werden oder verschwinden. Diese inneren Spannungen sind sicher auch dafür verantwortlich, dass die Umwandlungstemperatur kleinen Schwankungen unterworfen ist (Fig. 5).

Das Auftreten einer thermischen Hysteresis findet man oft bei Rotationsumwandlungen, so auch bei der DK. von NH_4Cl ¹⁸⁾ und NH_4Br ¹⁹⁾, wobei die Breite sehr stark variieren kann. In unserem Falle des $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{PO}_4$ beträgt die Breite der Hysteresisschleife ca. 2° , was gut mit dem Wert von STEPHENSON¹⁴⁾ übereinstimmt, der ihn aus der Hysteresis bei der spezifischen Wärme bestimmt hat.

Nach diesen Ergebnissen war es interessant zu untersuchen, was für einen Einfluss die teilweise Ersetzung der NH_4^+ -Ionen durch Tl^+ -Ionen auf die Rotationsumwandlung und damit auch auf das mögliche seignetteelektrische Verhalten haben würde. Zu diesem Zwecke stellten wir Mischkristalle mit verschiedenen Prozentsätzen an Tl her.

Der Absolutwert der DK. bei Zimmertemperatur ändert sich sowohl in der *a*- als auch in der *c*-Richtung bei den $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$ -Mischkristallen gegenüber dem Wert beim $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{PO}_4$ ($\epsilon_a = 56$; $\epsilon_c = 15,4$) praktisch nicht. Die Erklärung dieser Tatsache werden wir später geben können.

Hingegen haben die Experimente gezeigt, dass der Einfluss der Einlagerung von Tl^+ -Ionen in das $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{PO}_4$ -Gitter auf die Rotationsumwandlung ausserordentlich gross ist. Es rechtfertigte sich dabei die Mischreihe in 2 Gruppen einzuteilen:

1. Kristalle mit 0% bis 25% Tl.
2. Kristalle mit mehr als 25% Tl.

Bei der ersten Gruppe hat die Beimengung von Tl den Effekt, dass die Umwandlungstemperatur mit wachsendem Tl-Gehalt zu tiefern Werten verschoben wird. Die Verschiebung geht dabei ziemlich linear mit dem Tl-Gehalt und nimmt ausserordentlich grosse Werte an. So liegt der Umwandlungspunkt (λ Punkt) beim Kristall von 25% Tl bei ca. 90° K, was eine Verschiebung um ca. 58° gegen-

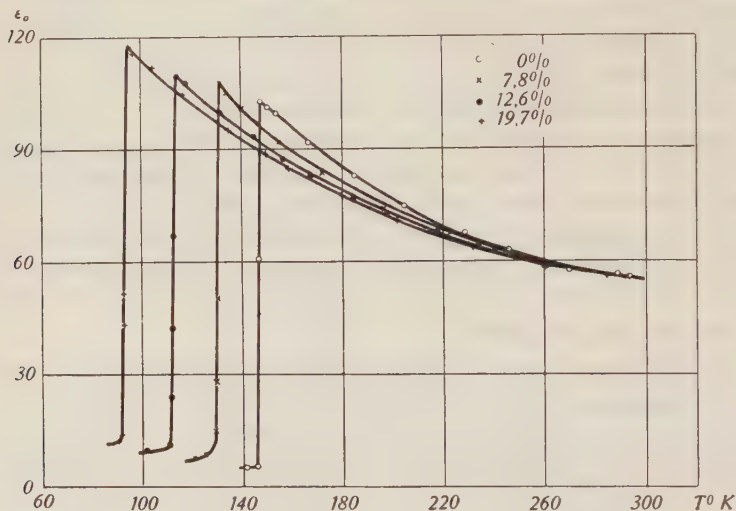


Fig. 6.

Temperaturabhängigkeit der Dk. ϵ_a von $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$.

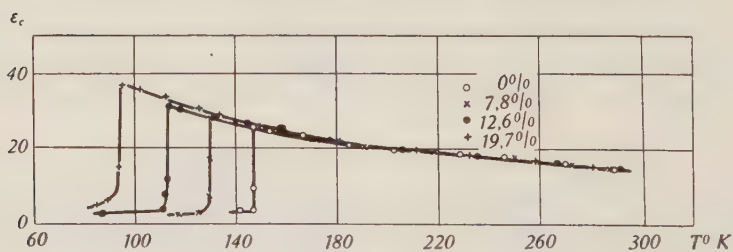


Fig. 7.

Temperaturabhängigkeit der Dk. ϵ_c von $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$.

über 0% Tl bedeutet. Alle Kristalle der ersten Gruppe zeigen aber beim Sprungpunkt denselben fast diskontinuierlichen Abfall der DK. und erleiden eine mechanische Zerstörung wie das $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$. (Fig. 6 und 7.)

Die Erscheinung, dass eine Umwandlung höherer Art, um eine solche handelt es sich, wie wir später sehen werden, durch Bei-

mischung eines Fremdstoffes in den Kristall zu tieferen Temperaturen verschoben werden kann, wurde auch schon bei andern Stoffen bemerkt. So haben EUCKEN und VEITH²⁰⁾ die Rotationsumwandlung am festen Methan, CH_4 , untersucht und festgestellt, dass eine Beimischung von Kr- oder Ar-Atomen eine Verschiebung der Umwandlungstemperatur zu tieferen Werten zur Folge hat. Doch ist der dort gefundene Wert der Verschiebung bedeutend kleiner als beim $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$. Der Versuch der mathematischen Behandlung dieser Tatsache wurde von SCHÄFER²¹⁾ gemacht, der dies damit erklärt, dass die Anwesenheit von Fremdatomen die Grösse der orientierten Bezirke verkleinert. Bei einem kleinen Bezirk aber, ist die Oberfläche zum Inhalt relativ gross, so dass die

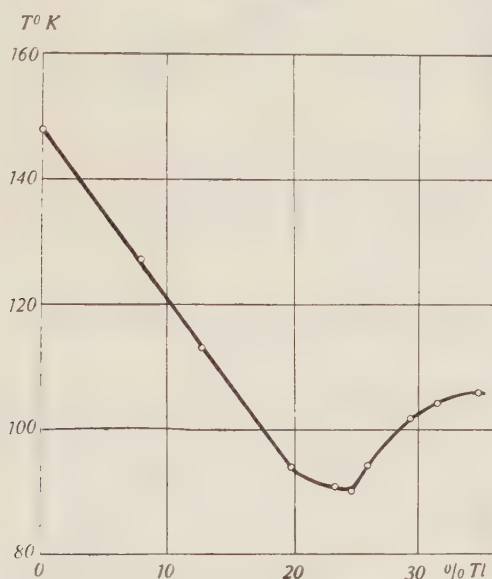


Fig. 8.

Umwandlungstemperatur T_l von $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$ in Funktion des Tl-Gehaltes.

Wechselwirkung der Nachbarschaft auf den betrachteten Bezirk gross wird. Da die Störenergie also gross ist, vollzieht sich die Umwandlung bei tieferen Temperaturen.

Die Kristalle der zweiten Gruppe, d. h. diejenigen mit mehr als ca. 25% Tl zeigen ein ganz anderes Verhalten. Erstens weist die Umwandlungstemperatur bei ca. 25% Tl ein Minimum auf und die Kristalle mit noch mehr Tl zeigen mit steigendem Tl-Gehalt gerade das umgekehrte Verhalten als die Kristalle der ersten Gruppe.

Denn jetzt verschiebt sich der λ Punkt der Rotationsumwandlung zu höheren Temperaturen. Die Umwandlungstemperatur in Funktion des Tl-Gehaltes weist also eine Umkehr bei ca. 25% Tl auf, wie Fig. 8 zeigt.

Als zweite wesentliche Änderung im Verhalten der zweiten Gruppe gegenüber der ersten ist die Tatsache anzusehen, dass

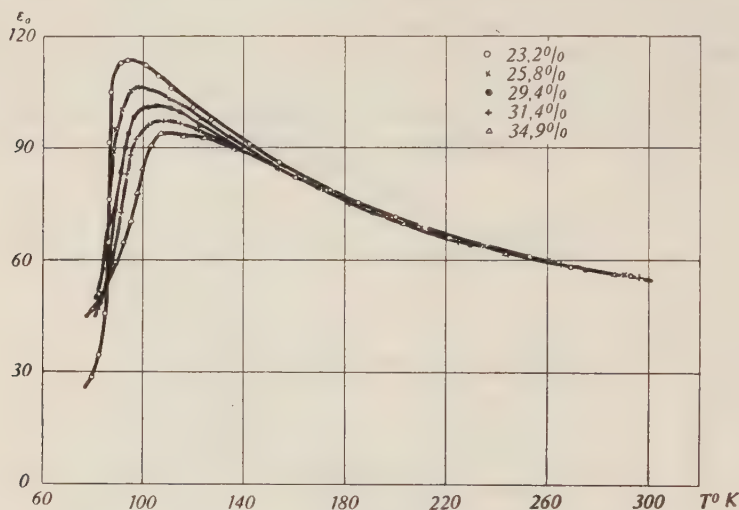


Fig. 9.

Temperaturabhängigkeit der Dk. ϵ_a von $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$.

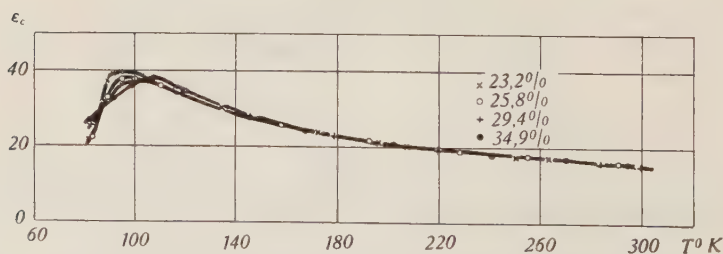


Fig. 10.

Temperaturabhängigkeit der Dk. ϵ_c von $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$.

oberhalb ca. 25% Tl die Kristalle beim Umwandlungspunkt keine mechanische Zerstörung mehr erleiden. Bei diesen Kristallen ist der Abfall der DK. beim λ Punkt also nur noch durch die eigentliche NH_4 -Rotationsumwandlung bedingt, so dass bei der Erwärmung die DK. wieder genau ihren früheren Wert erreicht. Den

Grenzfall der beiden Gruppen bilden die Kristalle von ca. 23 und 24%, bei denen fast keine Zerstörung mehr zu beobachten ist. Da bei den Kristallen der zweiten Gruppe die eigentliche Umwandlung nicht mehr durch die mechanische Zerstörung derselben überdeckt wird, kann nun auch über die Steilheit des Abfalles der DK. etwas ausgesagt werden. Es zeigt sich, dass die Umwandlung immer flacher wird, je mehr Tl man im Kristall einlagert. Neben einer Verschiebung des λ Punktes zu höheren Temperaturen tritt also auch eine Verflachung des Abfalles ein (Fig. 9 und 10), womit die Umwandlung sicher als eine solche von höherer Art gekennzeichnet ist.

Eine ähnliche Verflachung wurde von EUCKEN und VEITH²⁰⁾ auch beim CH_4 -Kr-Gemisch beobachtet und SCHÄFER²¹⁾ hat diese Tatsache damit zu erklären versucht, dass durch die Fremdatome die Umwandlungsenergie nicht so stark mit dem Ordnungsgrad im Kristall variiert, wie beim reinen Kristall, so dass die Umwandlung sich flacher vollzieht.

Schlussfolgerungen aus den Messungen der DK. werden wir später ziehen; vor allem werden wir noch auf das merkwürdige Verhalten der Umwandlungstemperatur mit der Tl-Konzentration zurückkommen.

b) Messung der Resonanzfrequenzen.

Apparatur:

Die zur Messung der piezoelektrisch erregten Eigenfrequenzen von Kristallplatten benutzte Apparatur war die übliche, bestehend

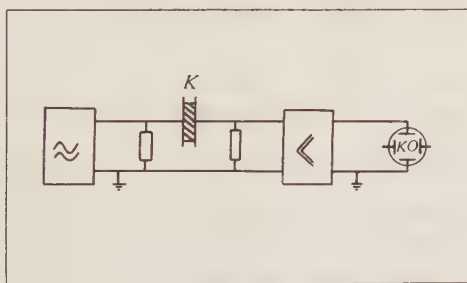


Fig. 11.

aus einem Hochfrequenzgenerator, einem Breitbandverstärker und einem Kathodenstrahloszillographen (Fig. 11).

Gemessen wurde nur an fehlerfreien quadratischen oder rechteckigen Kristallplatten, die mit aufgedampften Silber- oder Gold-

schichten versehen waren. Wie üblich wurden die Kristalle genau im Zentrum zwischen Spitzen gelagert, um ein möglichst freies Schwingen derselben zu erlauben. Um eine gute Relativgenauigkeit zu erhalten wurden auch hier gleich 5 Kristalle miteinander, parallel zur DK-Messung, im Topf gemessen.

Messungen:

Der Verlauf der Resonanzfrequenzen in Funktion der Temperatur bei Platten \perp der a -Achse zeigt beim $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{PO}_4$ und den $(\text{NH}_4, \text{Tl})_2\text{H}_2\text{PO}_4$ -Mischkristallen immer den gleichen Charakter (Fig. 12).

Mit fallender Temperatur steigt die Resonanzfrequenz ungefähr linear an. Dies ist das normale Verhalten eines piezoelektrischen Kristalles, das einem Härterwerden bei tiefen Temperaturen entspricht. Unterhalb der jeweiligen Umwandlungspunkten können,

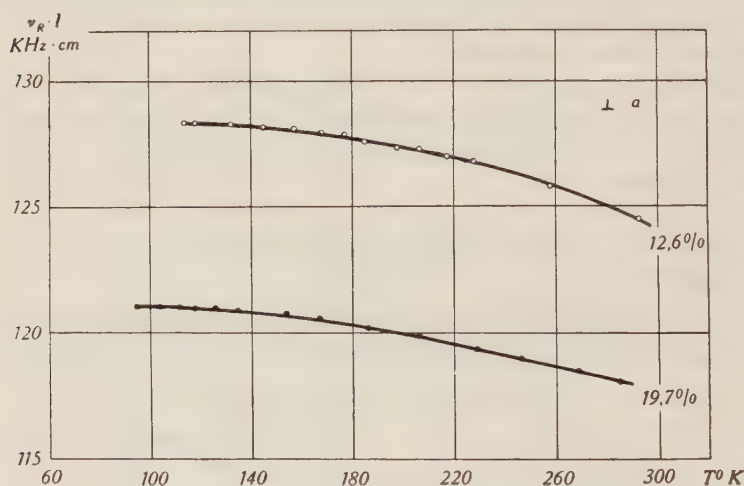


Fig. 12.

Temperaturabhängigkeit der Frequenzkonstanten $\nu \cdot l \perp a$ von $(\text{NH}_4, \text{Tl})_2\text{H}_2\text{PO}_4$.

infolge der mechanischen Zerstörung der Kristalle, leider keine Resonanzfrequenzen mehr gemessen werden, so dass der Einfluss der NH_4 -Rotationsumwandlung auf die elastischen Eigenschaften nicht beobachtet werden kann. Da aber bis zu den entsprechenden λ Punkten die Resonanzfrequenzen einen stetigen Verlauf zeigen, scheint es doch, dass die NH_4 -Umwandlung unmittelbar sprunghaft eintritt. Nach Messungen von Zwicker²²⁾ zeigen die Elastizitätskonstanten beim $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{PO}_4$ denn auch absolut keine Anomalien kurz vor dem Umwandlungspunkt, ganz im Gegensatz

zum seignetteelektrischen KH_2PO_4 , wo das Auftreten des Curiepunktes schon mehrere Grade früher an dem Verhalten der Elastizitätskonstanten erkennbar wird. Dies zeigt neben andern Effekten, dass der Mechanismus des $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ beim λ Punkt ein ganz anderer ist, als bei den Curiepunkten der Seignetteelektrika.

Aufschlussreich wird die Untersuchung bei $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$ mit viel Tl, da hier die Resonanzfrequenzen innerhalb und unterhalb des Umwandlungsgebietes verfolgt werden können, da diese Kristalle ja keine Zerstörung mehr erleiden. Es zeigt sich, dass bei der Umwandlungstemperatur (Abfall der DK.) die Frequenz der Eigenschwingung plötzlich sehr steil ansteigt um dann wieder leicht

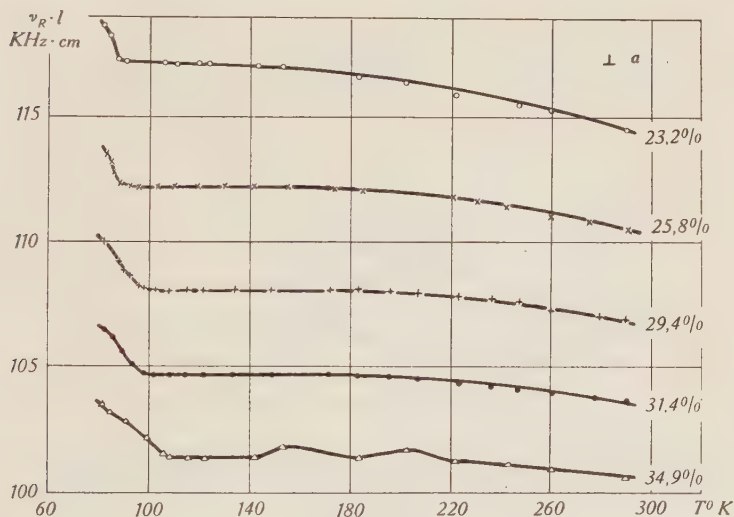


Fig. 13.

Temperaturabhängigkeit der Frequenzkonstanten $\nu \cdot l \perp a$ von $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$

abzuflachen (Fig. 13). Dass dieser Anstieg mit der NH_4 -Rotationsumwandlung zusammenhängt ist daran erkennbar, dass er immer mit dem Abfall der DK. zusammenfällt und so auch bei hohen Tl-Prozentsätzen wieder bei höheren Temperaturen auftritt.

Wie beim Verlauf der DK. ist der Charakter der Kurven bei ganz hohen Prozentsätzen viel flacher. Leider konnte das Verhalten bei noch tieferen Temperaturen nicht mehr untersucht werden, da wir nicht unter die Temperatur von flüssigem Stickstoff messen konnten. Bemerkenswert ist der verblüffend flache Verlauf der Resonanzfrequenzen bei den Kristallplatten $\perp a$ zwischen 25%

und 35% Tl. Beim Kristall von 34,9% zeigen sich mehrere Unregelmässigkeiten, was vielleicht auf grössere Gitterverzerrungen bei diesen sehr hohen Prozentsätzen zurückzuführen ist.

Betrachtet man die Kurvenschar in Fig. 12 und 13 und später auch in Fig. 14 und 16, so zeigt es sich, dass immer die Kurve eines Kristalls mit höherem Tl-Gehalt tiefer liegt, d. h., dass die Frequenzkonstante $\nu \cdot l$ für hochprozentige Kristalle kleiner wird. Berücksichtigt man noch die Variation der Dichte ϱ und bildet man das Produkt $\nu \cdot l \sqrt{\varrho}$, so findet man deutlich, dass sowohl bei Platten $\perp a$, als auch bei Platten $\perp c$ dieser Ausdruck mit wachsendem Tl-Gehalt sinkt. Das bedeutet aber nichts anderes, als dass der Kristall durch die Einlagerung von Tl⁺-Ionen weicher wird.

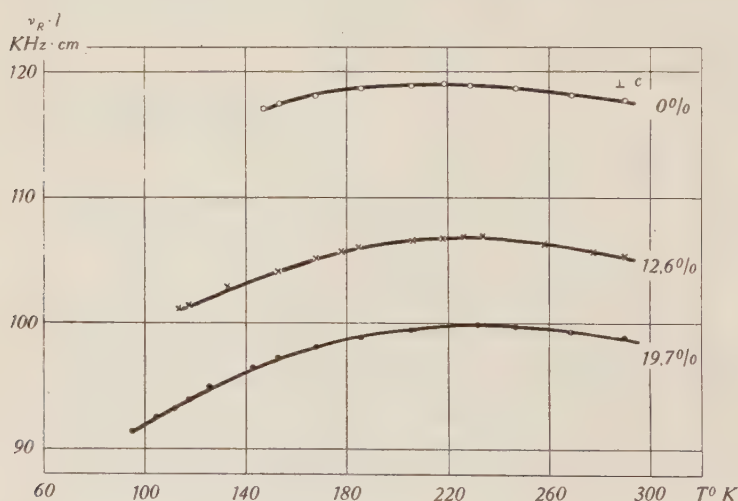


Fig. 14.

Temperaturabhängigkeit der Frequenzkonstanten $\nu \cdot l \perp c$ von $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$.

Interessante Resultate ergeben sich bei der Messung der Platten, die \perp der c -Achse geschnitten sind. Der Verlauf beim reinen $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ ist analog demjenigen der Seignetteelektrika, indem die Resonanzfrequenz in Funktion der Temperatur ein Maximum durchläuft (Fig. 14), welches sich bei 218° K befindet.

Bei den (NH_4, Tl) -Mischkristallen bleibt der allgemeine Charakter der Kurven erhalten, wobei sich aber das Maximum der Resonanzfrequenz mit dem Tl-Zusatz immer mehr zu höheren Temperaturen verschiebt. Wesentlich dabei ist, dass diese Verschiebung sich auch bei den Kristallen mit mehr als 25% Tl fortsetzt, und dass dabei

keine Anomalie im Sinne eines Umkehrpunktes, wie beim λ Punkt, sich zeigt. In Fig. 15 ist die Temperatur des Resonanzfrequenzmaximums in Funktion des Tl-Gehaltes aufgetragen.

Die Frage, wie sich die Eigenfrequenzen innerhalb und unterhalb des Umwandlungsgebietes verhalten, kann bei den Kristallen mit viel Tl leicht beantwortet werden. Es zeigt sich, dass dieselben, nachdem sie das Maximum durchlaufen haben, sehr steil abfallen bis zur Temperatur der Umwandlung. Dort tritt ein plötzlicher und sehr steiler Anstieg auf, ähnlich wie bei den Platten $\perp a$, nur

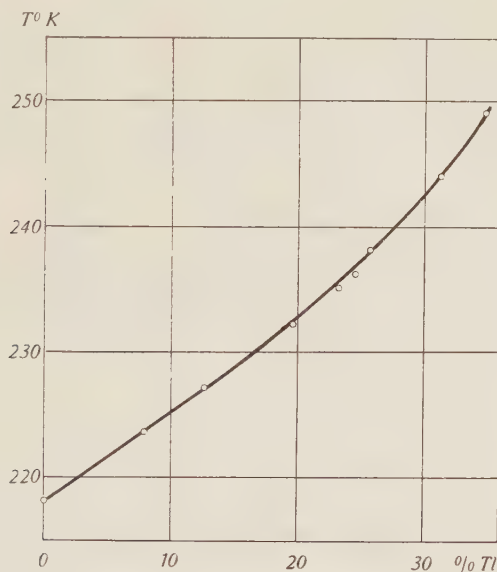


Fig. 15.

Temperatur des Resonanzfrequenzmaximums $\perp c$ von $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$ in Funktion des Tl-Gehaltes.

viel ausgeprägter. Analog der DK. ist auch hier bei ca. 25% Tl der steilste Verlauf der Umwandlung zu beobachten; bei höheren Tl-Prozentsätzen wird der Charakter viel flacher (Fig. 16).

Wie bei den Platten $\perp a$ verschiebt sich auch hier das scharfe Minimum mit dem Abfall der DK., ein weiterer Beweis dafür, dass es durch die NH_4 -Rotationsumwandlung bedingt ist (vergleiche Fig. 9 und 16), ganz im Gegensatz zum Resonanzfrequenzmaximum, welches unabhängig vom λ -Punkt sich gleichmässig zu höheren Temperaturen verschiebt (Fig. 15).

Da das Resonanzfrequenzmaximum mit der NH_4 -Rotationsumwandlung also scheinbar nichts zu tun hat, müssen wir nach einem andern Zusammenhang suchen. Das Auftreten eines solchen Maximums ist eine aussergewöhnliche Erscheinung, zeigt sich aber bei allen bis jetzt auf Eigenschwingungen untersuchten Seignettelektrika bei Platten, die in der seignetteelektrischen Achse angeregt werden¹²⁾. Es lag daher nahe, nach einem Zusammenhang zwischen Resonanzfrequenzmaximum und Curiepunkt zu suchen, Dies um so mehr, als ja schon andere Anzeichen dafür vorlagen,

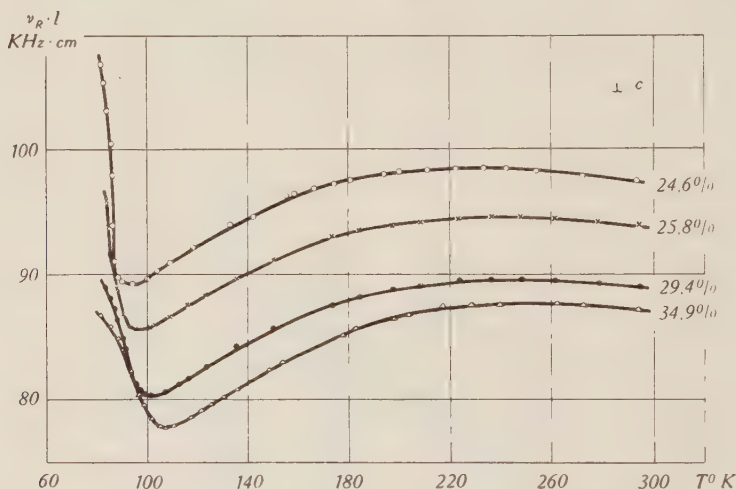


Fig. 16.

Temperaturabhängigkeit der Frequenzkonstanten $\nu \cdot l$ $\perp c$ von $(\text{NH}_4, \text{Tl}) \text{H}_2\text{PO}_4$.

dass das $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ und die Mischkristalle $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$ vor dem Auftreten der Rotationsumwandlung seignetteähnliche Eigenschaften aufweisen. Es gelang uns denn auch einen Zusammenhang zu finden auf folgende Art:

Zwischen den zwei Elastizitätsmoduln s_{ik}^{belegt} und s_{ik}^{isoliert} besteht der Zusammenhang²³⁾

$$s^{\text{bekl}} = s^{\text{iso}} + 4\pi \frac{d^2}{\epsilon} \quad (1)$$

wo d = Piezomodul und $\epsilon = DK$ bedeuten.

s^{iso} weist praktisch einen linearen Verlauf mit der Temperatur auf, so dass man setzen kann

$$s^{\text{iso}} = s_0 + aT \quad \text{mit } a > 0 \quad (2)$$

Damit wird (1) mit $\Phi = \frac{d^2}{\varepsilon}$

$$s^{\text{bekl}} = s_0 + a T + 4 \pi \Phi.$$

Das Minimum von s^{bekl} , d. h. das Maximum unserer Resonanzfrequenz finden wir durch Nullsetzung der 1. Ableitung.

$$\frac{d s^{\text{bekl}}}{d T} = a + 4 \pi \frac{d \Phi}{d T} = 0$$

$$\frac{d \Phi}{d T} = - \frac{a}{4 \pi} \quad \text{bei } T = T_{\text{max}}. \quad (3)$$

Da sowohl der Piezomodul d_{36} als auch die DK. ε_c bei den Seignettelektrika, wie KH_2PO_4 , einen hyperbelähnlichen Verlauf in Funktion der Temperatur mit der gleichen Unendlichkeitsstelle Θ (Curiepunkt) besitzen, können wir für Φ folgenden Ansatz machen:

$$\Phi = \Phi_0 \left(1 + \frac{A}{T - \Theta} + \frac{B}{(T - \Theta)^2} + \dots \right) \quad (4)$$

Glieder mit $(T - \Theta)$ im Zähler dürfen nicht vorhanden sein, weil ja bei $T \rightarrow \infty$, Φ sehr klein werden muss.

Durch Ableiten von Φ bei 1. Näherung ergibt sich

$$\frac{d \Phi}{d T} = - \Phi_0 \frac{A}{(T - \Theta)^2}. \quad (5)$$

Für die Temperatur des Maximumpunktes $T = T_{\text{max}}$ müssen die Gleichungen (3) und (5) einander gleich sein. Damit ergibt sich für die Temperaturdifferenz zwischen Resonanzmaximum und Curiepunkt.

$$T - \Theta = \sqrt{\frac{4 \pi A \Phi_0}{a}}. \quad (6)$$

Setzt man in der 1. Näherung für A mit Gleichung (4) den Wert

$$A = \frac{\Phi - \Phi_0}{\Phi_0} (T - \Theta)$$

ein, so ergibt sich

$$T - \Theta = \frac{4 \pi (\Phi - \Phi_0)}{a}. \quad (7)$$

Dabei bedeutet Φ den Wert von $\frac{d^2}{\varepsilon}$ bei $T = T_{\text{max}}$ und Φ_0 den Wert von $\frac{d^2}{\varepsilon}$ bei sehr grossem T und a die Neigung der Geraden von s^{isoliert} .

Für KH_2PO_4 , wo alle diese Grössen sehr gut bekannt sind, ergibt sich mit $T_{\text{max}} = 200^\circ \text{ K}$ $\varepsilon_T = 42$ $d_T = 135 \cdot 10^{-8}$, $\varepsilon_0 = 7,3$, $d_0 = 5 \cdot 10^{-8} \text{ cgs.}$, $a = 0,7 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{grad dyn}$ bei $(2 s_{12} + s_{66})^{\text{isoliert}}$

$$T - \Theta = 77,2^\circ$$

was in sehr guter Übereinstimmung mit dem experimentellen Wert von

$$T = 77^\circ \quad (\Theta = 123^\circ \text{ K}; T_{\text{max}} = 200^\circ \text{ K}) \text{ steht.}$$

Man sieht also, dass aus der Existenz eines Maximums in der Resonanzfrequenz, mit den Werten der DK. und des Piezomoduls bei T_{max} und bei $T \rightarrow \infty$, bei der alleinigen Voraussetzung eines hyperbelähnlichen Verlaufes der Funktion Φ , und dem Wert des Temperaturkoeffizienten des isolierten Elastizitätsmoduls, die Temperatur des Curiepunktes berechnet werden kann.

Bestimmt man analog den Abstand $T - \Theta$ für das $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ aus den experimentellen Daten, so findet man, dass der Curiepunkt dieser Substanz bei sehr tiefen Temperaturen, und zwar etwas unterhalb des absoluten Nullpunktes, liegen müsste. Dasselbe Resultat erhielt auch MASON²⁴⁾ aus Extrapolationen

Weitere Folgerungen aus dem Verhalten der Resonanzfrequenzen werden wir später in der Diskussion noch ziehen.

c) Messung des Piezoeffektes.

Apparatur und Methode:

Die dynamische Methode zur Messung der Piezomoduln wurde von BANTLE, MATTHIAS und SCHERRER¹³⁾ eingehend beschrieben. Darnach können die Piezomoduln d_{14} und d_{36} bestimmt werden durch Messung der Resonanzfrequenz ν , des Abstandes $\Delta \nu$ von Resonanz und Antiresonanz, und der DK. ε , und zwar nach folgender Formel:

$$d_{14}^2 = \frac{G_a}{\varrho \cdot l^2} \frac{\Delta \nu}{\nu^3} \varepsilon_a \quad d_{36}^2 = \frac{G_c}{\varrho \cdot l^2} \frac{\Delta \nu}{\nu^3} \varepsilon_c. \quad (8)$$

Hierbei bedeuten ϱ die Dichte, l die Kantenlänge der quadratischen Kristallplatten. G_a und G_c sind dabei Konstanten, die stark von der Schwingungsform und der Form der Kristalle abhängen. Die Methode kann also nur relative Messresultate liefern, wobei man aber durch Anschliessen an einen bekannten Wert des Piezomoduls absolute Resultate erhalten kann.

Messungen:

Uns interessierte vor allem, wie sich der Piezoeffekt bei Einlagerung von Tl^+ -Ionen in das $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ -Gitter ändert. Wir haben deshalb für alle untersuchten Prozentsätze ν und $\Delta\nu$ bei Zimmertemperatur bestimmt. Für die DK. wurden die Werte $\varepsilon_a = 56$ und $\varepsilon_c = 15,4$ benützt. Die Dichte ρ (siehe später) und die Dimension l wurden für jeden Kristall direkt gemessen. Da beim reinen $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ die Werte der Piezomoduln d_{14} und d_{36} bei Zimmertemperatur nach Messungen von SPITZER²⁵⁾ bekannt sind ($d_{14} = 4,5 \cdot 10^{-8}$; $d_{36} = 137 \cdot 10^{-8}$ cgs.), konnten die Konstanten G_a und G_c berechnet werden, womit nun eine absolute Messung des Piezoeffektes vorliegt. Vorausgesetzt ist dabei natürlich, dass diese Konstanten nicht allzu stark vom Tl-Gehalt abhängen.

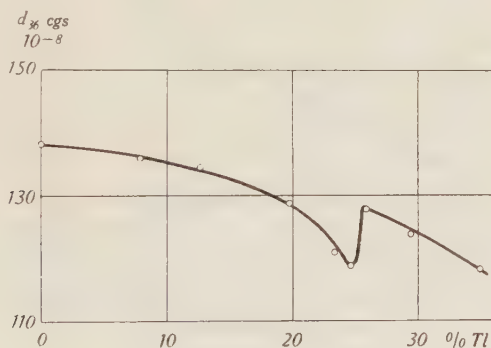


Fig. 17.

Piezomodul d_{36} von $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$ in Funktion des Tl-Gehaltes bei Zimmertemperatur.

Sehr auffallend ist nun, dass im Gegensatz zur DK., der Piezoeffekt bei Zimmertemperatur sehr stark vom Mischungsgrad abhängt. Der bei der Anregung in der ausgezeichneten Richtung massgebende Piezomodul d_{36} zeigt eine eindeutige Abnahme mit zunehmendem Tl-Gehalt, wobei um 25% Tl eine deutliche Anomalie in dem Sinne auftritt, dass d_{36} in diesem Gebiet eine Unstetigkeit besitzt (Fig. 17).

Der Modul d_{14} , der beim $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ sehr klein ist, nimmt dagegen mit zunehmendem Tl-Gehalt sehr stark zu und erreicht z. B. bei 35% Tl schon den Wert von ca. $52 \cdot 10^{-8}$ cgs. Auch dieser Piezomodul zeigt um 25% Tl eine Anomalie (Fig. 18).

Das Verhalten der Piezomoduln in Funktion der Temperatur wurde bei den Mischkristallen nicht genauer untersucht, denn sie zeigen kein wesentlich anderes Verhalten als $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$, wo sie mit fallender Temperatur ziemlich stark zunehmen (Fig. 3). Unterhalb des λ -Punktes bleiben die Kristalle piezoelektrisch, wobei die Grösse des Piezoeffektes aber abnimmt.

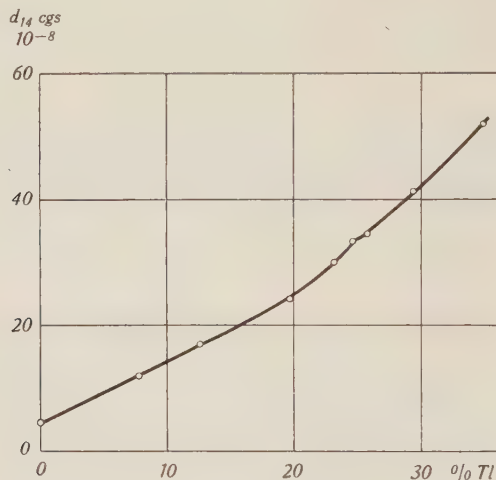


Fig. 18.

Piezomodul d_{14} von $(\text{NH}_4, \text{Tl}) \text{H}_2\text{PO}_4$ in Funktion des Tl-Gehaltes bei Zimmertemperatur.

Das wichtigste Ergebnis ist zweifellos das gänzlich verschiedene Verhalten von d_{14} und d_{36} bei Zusätzen von Tl^+ -Ionen. Wir haben schon früher ¹²⁾ darauf hingewiesen, dass das Tl^+ -Ion sich gegenüber den Alkaliionen K^+ , Rb^+ , Cs^+ , und auch NH^+ ganz anders verhält und hatten die Vermutung ausgesprochen, dass die viel grössere Polarisierbarkeit des Tl^+ -Ions dafür verantwortlich sei. Tatsächlich sind die Werte der Polarisierbarkeit stark verschieden, wie die folgende Reihe zeigt:

K^+	Rb^+	NH_4^+	Tl^+
$0,83 \cdot 10^{-24}$	$1,40 \cdot 10^{-24}$	$1,69 \cdot 10^{-24}$	$3,84 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^3$

Durch diese grosse Polarisierbarkeit des Tl^+ -Ions tritt wahrscheinlich eine starke Änderung des Innern Feldes im Kristall auf, sodass damit das Verhalten der Piezomoduln vielleicht erklärt werden kann.

d) Messung der Dichte und des Molvolumens.

Um Änderungen im Gitter des $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{PO}_4$, verursacht durch die Einlagerung von Tl^+ -Ionen, beobachten zu können, haben wir die Dichten bei allen Mischkristallen gemessen und dabei mit den errechneten Molekulargewichten die entsprechenden Molvolumina bestimmt. Der Verlauf der Dichte ρ und derjenige des Molvolumens V_M sind in Fig. 19 dargestellt.

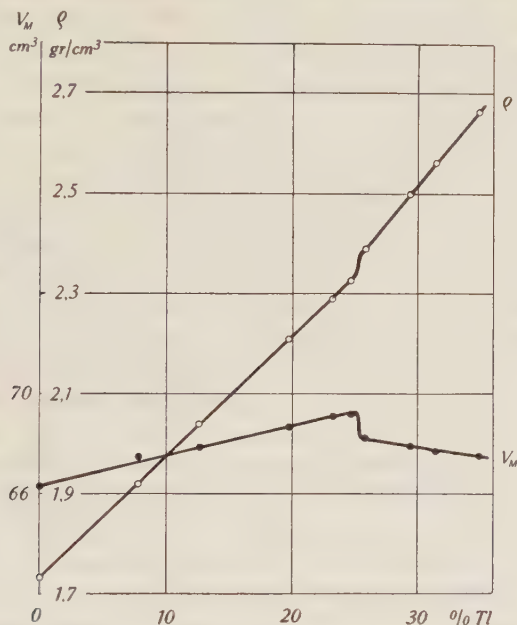


Fig. 19.

Dichte und Molvolumen von $(\text{NH}_4, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$ in Funktion des Tl-Gehaltes bei Zimmertemperatur.

Es zeigt sich, dass bis zu 25% Tl eine Dilatation des Gitters auftritt. Provisorische Röntgenaufnahmen ergaben denn auch eine kleine Änderung der Gitterkonstanten gegenüber dem reinen $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{PO}_4$, und zwar in dem Sinne, dass das Gitter sich nur in den a -Richtungen erweitert, was beim Kristall von 35% Tl wieder weitgehend abgenommen hat.

Das wesentlichste Ergebnis der Fig. 19 ist sicher der Abfall des Molvolumens bei ca. 25% Tl, wobei aber ein Vergleich der Fig. 8 und 19 eindeutig einen innern Zusammenhang zwischen Molvolumen V_M und der Umwandlungstemperatur T_λ vermuten lässt. Man gelangt daher zur Annahme, dass die Umwandlungstemperatur möglicherweise allein durch die Gitterkonstanten bedingt ist, was wir im nächsten Kapitel genauer zu erklären versuchen.

IV. Theorie und Diskussion.

a) Die NH_4^+ -Rotationsumwandlung.

Der Verlauf des Molvolumens (Fig. 19) kann vielleicht auf folgende Art erklärt werden. Bei einer Einlagerung von Fremdionen in ein Gitter kann dasselbe derart gestört werden, dass eine Erweiterung daraus resultiert. Im Falle des $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{PO}_4$ scheint dies zuzutreffen, da der Einbau von Tl^+ -Ionen bis zu 25% eine systematische Vergrösserung des Gitters zur Folge hat.

Bei 25% Tl treten aber ganz andere Verhältnisse ein. Betrachtet man nämlich das $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{PO}_4$ Gitter, so erkennt man, dass in jeder Elementarzelle 4 NH_4^+ -Ionen sitzen. Damit kann man aber bei 25% Tl mit Wahrscheinlichkeit annehmen, dass in jeder Zelle 1 NH_4^+ -Ion durch ein Tl^+ -Ion ersetzt ist, womit eine Überordnung eintreten kann, die das Kräfteverhältnis und das innere Feld im ganzen Gitter ändert. Aus diesem Grunde wohl, zeigen fast alle physikalischen Eigenschaften der Mischreihe bei 25% Tl eine Anomalie, so der Umkehrpunkt der Umwandlungstemperatur T_2 (Fig. 8), das Molvolumen und die Dichte (Fig. 19) und die 2 Piezomoduln (Fig. 17 und 18). Am offensichtlichsten zeigt sich aber die Änderung des Innern Feldes darin, dass die Kristalle mit mehr als 25% Tl keine mechanische Zerstörung mehr erleiden.

Oberhalb dieser Anomalie müssen andere Kräfte im Gitter massgebend sein, denn sonst könnte man sich die schwache Kontraktion des Gitters nicht erklären. Sehr wahrscheinlich spielt dabei die hohe Polarisierbarkeit der Tl^+ -Ionen eine grosse Rolle, denn infolge der Möglichkeit einer starken Deformation derselben kann eine Verkürzung der Abstände zweier Partikeln hervorgerufen werden. Diese anziehenden Kräfte zwischen stark polarisierbaren Partikeln sind vom Standpunkt der klassischen Physik aus von DEBYE²⁶⁾ und BORN²⁷⁾ als VAN DER WAALS'sche Kohäsionskräfte behandelt worden. In unserem Falle erscheint es durchaus möglich, dass das stark polarisierbare Tl^+ -Ion diese Änderungen der Gitterkräfte verursacht. Damit wäre unter Umständen die starke Zunahme des Piezomoduls d_{14} resp. die Abnahme von d_{36} zu verstehen, wenn man sich den piezoelektrischen Effekt hauptsächlich durch eine polarisierende Deformation der Ionen hervorgerufen denkt. Im Gegensatz dazu ändert sich die DK. bei Einlagerung von Tl^+ -Ionen nicht wesentlich, denn die erhöhte Ionenpolarisation kann im Vergleich zu der Dipolpolarisation der O—H...O-Brücken, wie wir sie analog wie beim KH_2PO_4 annehmen, vernachlässigt

werden. Allerdings kann die grössere Polarisierbarkeit des Ti^+ -Ions an der DK. unterhalb des Umwandlungspunktes beobachtet werden, da dort, wie wir noch zeigen werden, kein Dipolanteil mehr vorliegt. Dort steigt die Untergrundpolarisation mit dem Ti -Gehalt (Fig. 6).

Wohl können wir nun mit diesem Bild die Anomalie bei 25% Ti einigermaßen verstehen, aber um den direkten Zusammenhang der Umwandlungstemperatur mit den Gitterabständen zu erkennen, müssen wir etwas über die Kräfte zwischen den NH_4^+ -Ionen wissen. Vor allem interessiert uns, wie sich diese Kräfte in Funktion des Abstandes verhalten. Die Messungen der $(\text{NH}_4, \text{Ti})\text{H}_2\text{PO}_4$ -Mischreihe geben uns dazu eine Möglichkeit, denn in dieser Reihe haben wir eine stetige Variation der Abstände zwischen den NH_4 -Gruppen zur Verfügung, wobei wir nun die Kräfteverhältnisse an Hand der Umwandlungstemperaturen verfolgen können. Diese Methode, die NH_4 -Wechselkräfte mit den Gitteränderungen in Zusammenhang zu bringen, ist natürlich nur bei kleinen Ti -Prozentsätzen erlaubt, wo die NH_4 -Konzentration noch nicht wesentlich geändert ist.

Nehmen wir an, die Energie zwischen 2 NH_4^+ -Ionen sei nur eine Funktion von ihrem Abstand r

$$E = F(r) \quad (9)$$

wobei am Umwandlungspunkt diese Energie von der Grössenordnung von kT_λ wird.

$$F(r) = C kT_\lambda. \quad (10)$$

Das Molvolumen und damit indirekt auch der Abstand r zwischen 2 NH_4^+ -Ionen ist nach Fig. 19 durch eine Funktion vom Ti -Prozentsatz x gegeben. Wir müssen daher vorerst versuchen einen mathematischen Ausdruck für $r = r(x)$ zu erhalten. Da die Umwandlungstemperatur T_λ ebenfalls eine Funktion von x ist, können wir dann $F(r)$ berechnen mit x als Parameter.

Das Molekulargewicht M der Mischkristalle $(\text{NH}_4, \text{Ti}) \text{H}_2\text{PO}_4$ in Funktion von x hat folgende Form

$$M = \alpha' x + \beta (1 - x) = \alpha x + \beta \quad (11)$$

mit $\alpha' = 301,4$ (Molekulargewicht von TiH_2PO_4); $\beta = 115,1$ (Molekulargewicht von $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$) und $\alpha = 186,3$.

Ferner kann die Dichte ρ in 1. Näherung durch eine Gerade in der Variablen x dargestellt werden (Fig. 19).

$$\rho = \gamma x + \delta \quad (12)$$

$\gamma = 2,42 \quad \delta = 1,735.$

Damit wird das Molvolumen

$$V_M = \frac{M}{\rho} = \frac{\alpha x + \beta}{\gamma x + \delta}. \quad (13)$$

Da das $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ tetragonal kristallisiert und somit die a -Achse gleich der b -Achse ist, kann das Molvolumen auch wie folgt geschrieben werden:

$$V_M = N a^2 c. \quad (14)$$

Berücksichtigt man, dass bei $x = 0$ die Beziehung

$$\frac{\beta}{\delta} = N a_0^2 c_0 \quad (15)$$

gilt, wo a_0 und c_0 die Gitterkonstanten des reinen $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ bedeuten, so erhält man durch Gleichsetzen von (13) und (14) für x folgenden Ausdruck:

$$x = \frac{\frac{a^2 c}{a_0^2 c_0} - 1}{\frac{\alpha}{\beta} - \frac{a^2 c \gamma}{a_0^2 c_0 \delta}}. \quad (16)$$

Röntgenaufnahmen am Kristall von ca. 20% Tl haben ergeben, dass derselbe sich gegenüber $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ praktisch nur in den a -Richtungen ausgedehnt hat, währenddem die c -Richtung im Vergleich dazu konstant bleibt. Damit wird

$$\frac{a^2 c}{a_0^2 c_0} = \frac{a^2}{a_0^2}. \quad (17)$$

Berücksichtigt man ferner, dass die 4 nächsten NH_4 -Nachbarn eines herausgegriffenen NH_4^+ -Ions ein in der c -Richtung sehr stark zusammengedrücktes Tetraeder bilden, so darf man in Näherung das Verhältnis der Abstände zwischen 2 Nachbar- NH_4 -Gruppen bei $x\%$ und 0% , $\frac{r}{r_0}$, gleich dem Verhältnis der Gitterkonstanten $\frac{a}{a_0}$ setzen.

$$\frac{a^2}{a_0^2} = \frac{r^2}{r_0^2}. \quad (18)$$

Damit haben wir die Beziehung $x(r)$ von der Form:

$$x = \frac{R^2 - 1}{\frac{\alpha}{\beta} - \frac{\gamma}{\delta} R^2} \quad \text{mit } R = \frac{r}{r_0} \quad (19)$$

Aus Fig. 8 sieht man, dass $T_\lambda(x)$ durch eine Gerade approximiert werden kann, sofern $x \gtrsim 0,2$ ist.

$$T_\lambda = T_0 - \mu x \quad (20)$$

mit $\mu = 275$ grad/Mol%; $T_0 = 148^\circ \text{K}$.

Mit den Gleichungen (19) und (20) erhält unser Energieansatz (10) folgende Form:

$$F(r) = F_0 \left(1 + \frac{\mu}{T_0} \frac{\delta}{\gamma} \frac{R^2 - 1}{R^2 - \frac{\alpha \delta}{\beta \gamma}} \right) \quad (21)$$

$$F(r) = F_0 \left(1 + \lambda \frac{R^2 - 1,00}{R^2 - 1,16} \right)$$

wo $F_0 = Ck T_0 =$ Energie bei 0% Tl; $\lambda \cong 1,33$; $R = \frac{r}{r_0} \geq 1,00$.

Der Ausdruck $\frac{R^2 - p^2}{R^2 - q^2}$ kann entwickelt werden in

$$\frac{q^2 - p^2}{2q} \left(\frac{1}{R - q} - \frac{1}{R + q} \right) + 1$$

mit $p^2 = 1,00$; $q^2 \cong 1,16$; $q \cong 1,08$, so dass man folgenden Ausdruck erhält:

$$F(r) = F_0 \left(A - B r_0 \left(\frac{1}{1,08 r_0 - r} + \frac{1}{1,08 r_0 + r} \right) \right) \quad (22)$$

mit $A \cong 2,33$; $B \cong 0,1$.

Es ist aber zu beachten, dass $R = \frac{r}{r_0}$ viel kleiner als $q = 1,08$ ist d. h. $(1,08 r_0 - r) > 0$. Damit könnte unter Umständen der Ausdruck $\frac{1}{c - q} + \frac{1}{c + q}$ auf folgende Art (Fig. 20a) interpretiert werden. Das Potential einer Ladung +1 im Punkte C im Felde der beiden Ladungen +1 in den Punkten A und B hat bei konstantem Abstand $2c$ derselben folgenden Wert:

$$V = \frac{1}{c - q} + \frac{1}{c + q} \quad (23)$$

Die innere Klammer der Gleichung (22) stellt also ein abstossendes Potential dar, erzeugt durch 3 Ladungen gleichen Vorzeichens, so dass wir uns vielleicht von den Verhältnissen beim $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ folgendes Bild machen können.

Oberhalb der Umwandlungstemperatur können die NH_4^+ -Gruppen rotieren, so dass die Lagen der 4 H-Atome keine Vorzugsstellungen einnehmen. Wird der Kristall abgekühlt, so kann man annehmen, dass die NH_4^+ -Gruppen infolge ihrer Quadrupolmomente sich gegenseitig so beeinflussen, dass schliesslich bei der Umwand-

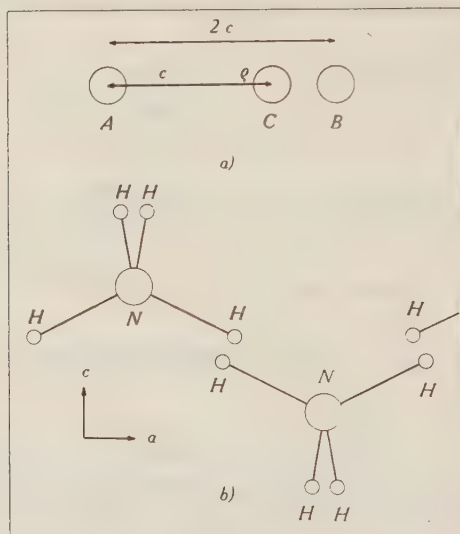


Fig. 20.

lungstemperatur die H-Atome zweier NH_4^+ -Gruppen sich in der in Fig. 20b dargestellten Weise einstellen.

Aus dieser Darstellung ist sofort ersichtlich, dass bei einer Gittervergrößerung ($R > 1$) die 2 nächstbeieinanderliegenden H-Atome sich noch mehr nähern, womit das abstossende Potential zwischen diesen beiden stark ansteigt. Dabei ist die Abnahme des abstossenden Potentials zwischen den 2 weiter voneinander entfernten H-Atomen im Vergleich dazu vernachlässigbar. Das bedeutet aber nichts anderes, als dass in dem Zustand eines kleineren Abstandes, d. h. bei Gittervergrößerung, die Energie F , die notwendig ist zur Aufbrechung des Ordnungszustandes der NH_4^+ -Gruppen kleiner wird, so dass die Umwandlungstemperatur bei tieferen Werten liegen muss.

Eine interessante Parallele zu unserem Fall des $(\text{NH}_4, \text{Ti})\text{H}_2\text{PO}_4$ findet man in den NH_4 -Halogeniden (Cl, Br, J), die bekanntlich

auch eine NH_4 -Rotationsumwandlung aufweisen. Die Werte der Abstände zwischen je 2 NH_4^+ -Ionen betragen:

NH_4Cl :	3,86 Å
NH_4Br :	4,05 Å
NH_4J :	4,37 Å

Die entsprechenden Umwandlungstemperaturen haben nach Messungen von SIMON²⁸⁾ folgende Werte:

NH_4Cl :	242,8° K
NH_4Br :	235,2° K
NH_4J :	230,7° K

Auch bei dieser Gruppe von NH_4 -Kristallen nimmt mit zunehmendem Abstand der NH_4^+ -Ionen die Umwandlungstemperatur ab.

Die bisherigen Ergebnisse haben uns gezeigt, dass die Umwandlung beim $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{PO}_4$ bei 148° K bedingt ist durch eine NH_4 -Rotationsumwandlung. Wie BAERTSCH²⁹⁾ schon bemerkt hat, ist aber der Abfall der DK. sowohl beim $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{PO}_4$ als auch bei dem von ihm speziell untersuchten $(\text{NH}_4)_2\text{H}_3\text{JO}_6$ so ausgeprägt, dass man zur Annahme neigen muss, dass gleichzeitig mit der Einstellung der NH_4^+ -Ionen in ihre feste Lage auch ein Einfrieren der Protonenbeweglichkeit auf den O-H.. O-Brücken stattfindet. Es ist dies schon daraus ersichtlich, dass auch beim $\text{Ag}_2\text{H}_3\text{JO}_6$ ein Abfall der DK. vorliegt, obwohl hier ja keine NH_4 -Umwandlung stattfinden kann. Allerdings ist dann der Charakter viel weniger steil. Analog dazu zeigt sich auch bei uns, dass der Umwandlungsmechanismus bei den $(\text{NH}_4, \text{Ti})\text{H}_2\text{PO}_4$ -Mischkristallen viel flacher vor sich geht als beim $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{PO}_4$, was vielleicht auch damit erklärt werden kann, dass der Anteil der NH_4 -Umwandlung viel kleiner wird, oder wenigstens die Einstellung der NH_4 -Gruppen viel allmählicher vor sich geht.

Mit unsern Überlegungen der NH_4 -Umwandlung kann man aber das Einfrieren der O-H.. O-Brücken verstehen. Oberhalb der Umwandlungstemperatur rotieren die NH_4 -Gruppen, so dass, wie wir schon früher gesagt haben, die H-Atome keine Vorzugslagen einnehmen. Beim Umwandlungspunkt hingegen ist die H-Anordnung infolge der Einstellung der NH_4^+ -Ionen eine ganz bestimmte, und zwar liegen die H-Konzentrationen zu allen Seiten der O-H.. O-Brücken derart, dass der Verlauf der Potentialkurve längs der O-H.. O-Brücke so modifiziert wird, dass nach dem Bild der SLATERSchen Theorie³⁰⁾ in der Mitte der Brücke ein Potentialberg

von sehr grosser Höhe entsteht. Dabei findet das Proton keine Möglichkeit mehr, seinen Platz zu wechseln, sondern bleibt in einer der beiden Mulden sitzen. Damit fällt aber die DK. schnell ab, analog wie beim KH_2PO_4 unterhalb des Curiepunktes.

b) Die seignetteelektrische Umwandlung.

Zwischen den Gitterkonstanten und der NH_4 -Umwandlung haben wir im vorhergehenden Kapitel einen Zusammenhang in der Form feststellen können, dass bei einer Vergrösserung des Abstandes zwischen den NH_4 -Gruppen die Umwandlungstemperatur zu tieferen Werten verschoben wird.

Ganz anders liegen nun die Verhältnisse für die Curietemperaturen bei den Seignetteelektrika. Denn bei den $(\text{K}, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$ -Mischkristallen, wo eine Aufweitung des Gitters gegenüber dem KH_2PO_4 vorliegt, werden die Curiepunkte deutlich zu höheren Temperaturen¹²⁾ verschoben. Sehr gut ist diese Erscheinung vor allem im Falle des RbH_2PO_4 zu überblicken. Dieses Salz weist wesentlich grössere Werte in den Gitterkonstanten gegenüber KH_2PO_4 auf, so dass uns die Verschiebung des Curiepunktes um ca. 23° von 123° K auf 146° K in eindeutiger Weise darlegt, dass hier, im Gegensatz zur NH_4 -Umwandlung, mit einer Gittervergrösserung eine Verschiebung des Curiepunktes zu höheren Temperaturen verknüpft ist.

Dieses Problem wurde kürzlich in einer Arbeit von UBBELOHDE und WOODWARD³¹⁾ zur Erklärung des unteren Curiepunktes beim Seignettesalz behandelt. Sie benutzten dazu das von HUGGINS³²⁾ interpretierte Bild der MORSESchen Formel³³⁾ über den Potentialverlauf bei der O-H..O-Bindung. Danach weist dieser bei einer Hydrogenbindung, deren Länge kleiner ist als ein kritischer Abstand $d = 2,592 \text{ \AA}$ ein Minimum in der Mitte der Brücke auf, während bei einer Brückenlänge von mehr als $2,592 \text{ \AA}$ der Potentialverlauf in der Mitte ein Maximum hat, so dass der Wasserstoff in einer der beiden Mulden sitzt. In diesem Fall erhält die O-H..O-Bindung aber polaren Charakter, so dass damit unter besonderen Umständen Seignetteelektrizität erklärt werden kann. Auf diese Weise wird von UBBELOHDE und WOODWARD versucht, das Auftreten des unteren Curiepunktes damit zu erklären, dass bei dieser Temperatur, die kritische Länge der O-H..O-Brücke, infolge der thermischen Gitterausdehnung, erreicht wird. Den oberen Curiepunkt, durch Verschwinden der spontanen Polarisation, zu erklären wird dabei unmöglich.

Für den Fall des KH_2PO_4 und seiner isomorphen seignetteelektrischen Salze, die nur einen (oberen) Curiepunkt besitzen, glauben wir hingegen uns folgendes Bild machen zu müssen. Bei diesen Kristallen ist schon beim absoluten Nullpunkt die Länge der Brücke von der Grösse, dass 2 Potentialmulden vorhanden sind. Mit steigender Temperatur wächst nun infolge der thermischen Gitterausdehnung die Länge der O-H..O-Brücke und damit auch die Höhe der Potentialschwelle, dazu entgegenwirkend wächst aber die thermische Energie viel schneller, so dass die Verschiebung des Protons von einer Mulde in die andere durch ein äusseres Feld viel leichter vor sich gehen kann. Bei noch höherer Temperatur kommt man schliesslich zu dem Punkt, wo die Nullpunktenergie plus die thermische Energie vergleichbar wird mit der Potentialschwelle, so dass das H-Atom auf der ganzen Brücke keine Vorzugslagen mehr einnimmt. Damit verlieren die beiden Minima aber ihre Bedeutung und die spontane Polarisierung verschwindet (oberer Curiepunkt).

Beim RbH_2PO_4 ist nun aber, infolge der grösseren Gitterkonstanten, die Höhe des Potentialberges grösser als beim KH_2PO_4 , wodurch der obere Curiepunkt zu höheren Temperaturen zu liegen kommt; desgleichen beim $(\text{K}, \text{Tl})\text{H}_2\text{PO}_4$. Dieses Bild der Seignetteelektrizität stimmt qualitativ gut, doch können keine quantitativen Aussagen gemacht werden.

Zürich, Physikalisches Institut der E.T.H.

Literaturverzeichnis.

- 1) MÜLLER, Phys. Rev. **47**, 175 (1935).
- 2) BUSCH, H. P. A. **11**, 269 (1938).
- 3) BANTLE, H. P. A. **15**, 373 (1942).
- 4) EREMEJEFF, KOBEKO, KURTSCHATOFF, Jour. f. exp. u. theor. Phys. d. U. d. S. R. **2**, 102 (1932).
- 5) KURTSCHATOFF, EREMEJEFF, Phys. Z. d. U. d. S. R. **1**, 141 (1932).
- 6) KURTSCHATOFF, EREMEJEFF, Phys. Z. d. U. d. S. R. **3**, 304 (1933).
- 7) BÄRTSCHI, MATTHIAS, MERZ, SCHERRER, H. P. A. **18**, 240 (1945).
- 8) E. v. BERG, Ber. d. chem. Ges. **34**, 4182 (1901).
- 9) HENDRICKS, Am. Jour. of Science **14**, 269 (1927).
- 10) GMELIN, **21**, 907.
- 11) BÄRTSCHI, Mündliche Mitteilung.
- 12) MATTHIAS, MERZ, H. P. A. **19**, 227 (1946).
- 13) BANTLE, MATTHIAS, SCHERRER, H. P. A. **18**, 389 (1945).
- 14) STEPHENSON, Jour. Amer. Chem. Soc. **66**, 1397 (1944).
- 15) BÄRTSCHI, MATTHIAS, MERZ, SCHERRER, H. P. A. **18**, 238 (1945).
- 16) RAMMELSBERG, Sitzungsbericht d. Berliner Akad. **287** (1882).

- ¹⁷⁾ UBBELOHDE, WOODWARD, *Nature* **144**, 632 (1939).
- ¹⁸⁾ DINICHERT, H. P. A. **17**, 400 (1944).
- ¹⁹⁾ BRUCE, *Trans. of Faraday Soc.* **35**, 706 (1939).
- ²⁰⁾ EUCKEN, VEITH, *Z. phys. Chemie B* **34**, 275 (1936).
- ²¹⁾ SCHÄFER, *Z. phys. Chemie B* **44**, 127 (1939).
- ²²⁾ ZWICKER, H. P. A. **19**, 523 (1946).
- ²³⁾ LÜDY, H. P. A. **15**, 527 (1942).
- ²⁴⁾ MASON, *Phys. Rev.* **69**, 173 (1946).
- ²⁵⁾ SPITZER, *Dissertation*, Göttingen 1938.
- ²⁶⁾ DEBYE, *Phys. Z.* **21**, 178 (1920); **22**, 302 (1921).
- ²⁷⁾ BORN, *Handbuch d. Physik*, 2. Aufl. (1933); XXIV₂, 738 ff.
- ²⁸⁾ SIMON, *Z. phys. Chemie*, **129**, 339 (1927).
- ²⁹⁾ BÄRTSCHI, H. P. A. **18**, 267 (1945).
- ³⁰⁾ SLATER, *Jour. Chem. Phys.* **9**, 16 (1941).
- ³¹⁾ UBBELOHDE, WOODWARD, *Proc. Roy. Soc.* **185**, 448 (1946).
- ³²⁾ HUGGINS, *Jour. Phys. Chem.* **40**, 723 (1936).
- ³³⁾ MORSE, *Phys. Rev.* **34**, 57 (1929).

Über Aufbauzeit, Rückwirkungsmechanismus und Stabilität bei stromschwachen Niederdruckentladungen

von Hans Luz von Gugelberg.

(20. V. 1947.)

Bezeichnungen, Definitionen, Masseneinheiten.

	Bezeichnung	Masseneinheit
1. Spannung an den Elektroden	U	V
2. Spannungen der statischen Stromspannungscharakteristik	U_{st}	V
3. Differenz zwischen angelegter Spannung und statischer Brennspannung ($\Delta U = U - U_{st}$)	ΔU	V
4. Stromdichte	i	A cm ⁻²
5. Fremdstromdichte (durch Fremdlicht erzeugter Anfangsstrom	i_0	A cm ⁻²
6. Entladungsstrom (infolge Trägerbewegung)	J	A
7. Fremdstrom	J_0	A
8. Trägerdichten (Ionen und Elektronen im cm ³)	n_+, n_-	cm ⁻³
9. Trägergeschwindigkeiten (in Feldrichtung) (Abkürzung: $\frac{1}{v_+} + \frac{1}{v_-} = \frac{1}{v}$)	v_+, v_-	cm s ⁻¹
10. Druck	p	Tor
11. Elektrische Feldstärke	E	V cm ⁻¹
12. Ionisierungskoeffizient der Elektronen (Zahl der durch ein Elektron pro cm Weg in Feldrichtung erzeugten Ionenpaare)	α	cm ⁻¹
13. Zahl der durch ein Elektron pro Volt durchlaufene Potentialdifferenz erzeugten Ionenpaare	η	V ⁻¹
14. Lichtenregungskoeffizient der Elektronen (pro cm erzeugte Photonen)	ε	cm ⁻¹
15. Zahl der pro auftreffendes Ion an der Kathode ausgelösten Nachlieferungselektronen	γ	
16. Zahl der pro auftreffendes Photon an der Kathode ausgelösten Nachlieferungselektronen	δ	
17. Absorptionskoeffizient des Entladungslichtes im Gas.	k	cm ⁻¹
18. Bruchteil des Entladungslichtes, das im Hinblick auf die Geometrie verhältnisse die Kathode trifft	g	
19. Reziproke Zeitkonstante des exponentiellen Stromanstieges $J(t) = J(0) e^{\lambda t}$	λ	s ⁻¹

1. Ziel.

Die nachstehenden Untersuchungen über den zeitlichen Verlauf der Stromentwicklung in der Glimmentladung verfolgen zwei Hauptziele:

1. Die *Natur des Rückwirkungsmechanismus*, der zur Elektronenbefreiung im Gebiet der Kathode und damit zur Existenz einer selbständigen Entladung führt, ist nur qualitativ geklärt. Es ist im allgemeinen nicht bekannt, in welchem Umfang die einzelnen Elementarprozesse daran beteiligt sind. Messungen an nichtstationären Vorgängen sind nun zur Trennung der Rückwirkungsursachen besonders geeignet, da die Rückwirkung auf sehr verschieden rasch wirkenden Effekten beruht (z. B. Photoeffekt und Diffusion metastabiler Atome). Diese können im nichtstationären Fall (z. B. während des Aufbaues) je nach Wahl der Versuchsbedingungen in sehr verschiedenem Umfang zur Wirkung kommen ¹⁾²⁾.

2. Weiter sollte die *Grössenordnung der Aufbauzeiten bei geringen Überspannungen* für verschiedene Verhältnisse gemessen werden. SCHADE³⁾ hat nämlich gefunden, dass bei kleinen ΔU der Stromanstieg äusserst langsam vor sich gehen kann. Dieser langsame Stromanstieg, der im allgemeinen für das stabile Brennen der Townsend-Entladung verantwortlich ist, wirkt sich bei manchen Problemen der Technik störend aus (so z. B. bei der Steuerung eines Glimmrelais mit sehr kleinen Strömen). Es ist daher wichtig, die Grössenordnung der Trägheiten, mit denen man zu rechnen hat, zu kennen. Geeignete Gase sowie Feld- und Druckverhältnisse können auch im Gebiet sehr kleiner Ströme und Überspannungen wesentlich kürzere Aufbauzeiten ergeben.

Unsere Messungen beschränken sich auf sog. Niederdruckentladungen ($p \cdot d < 100$ Tor·cm). Sie befassen sich also mit dem Lawinaufbau oder Townsend-Aufbau und nicht mit dem viel rascher wirkenden Kanalaufbau, der für den Funkendurchschlag bei grösserem $p \cdot d$ massgebend ist (Lit. bei ⁴⁾⁵⁾). Wir beschäftigen uns auch nicht mit dem statistischen Zündverzug, d. h. jener Zeit, die nach dem Anlegen der Spannung vergeht, bis ein Zufallselektron den Vorgang einleitet. Die Messungen beziehen sich vielmehr auf die Dauer des Stromanstieges zwischen einem Anfangsstrom von ca. 10^{-11} A und einem Endstrom von ca. 10^{-4} A. Unter diesen Bedingungen sind im homogenen Feld Raumladungswirkungen noch nicht von grosser Bedeutung für Feldstruktur, Ionisierung und Aufbauzeit⁶⁾.

Auf eine historische Darstellung mit entsprechenden Literaturangaben wird hier verzichtet. Es sei dafür auf die sehr vollständigen und nach Sachgebieten geordneten Literaturberichte von BARTHOLOMEYCZYK, MIERDEL und SEELIGER verwiesen⁷⁾. Als neuere zusammenfassende Arbeiten seien die von DRUYVESTEYN und PENNING⁸⁾ (Niederdruckentladung) sowie die von WINSTANLEY, v. ENGEL und MEEK⁹⁾ und von FRANCIS und JENKINS¹⁰⁾ genannt. Ausser den bekannten älteren Lehrbüchern (besonders dem von v. ENGEL und STEENBECK) seien hier noch das von DOSSE-MIERDEL¹¹⁾ und das von LOEB¹²⁾ aufgeführt. Mit dem Problem der lichtelektrischen Rückwirkung beschäftigt sich besonders ROGOWSKI²⁾ in einer zusammenfassenden Arbeit, während ein anderer Bericht desselben Autors die Wirkung der metastabilen Atome in der Gasentladung behandelt¹³⁾.

2. Experimentelles.

a) Die Messanordnung.

Da heute die notwendigen Schreibgeschwindigkeiten mit geringem technischem Aufwand erreicht werden können, wurde zur Messung der Aufbauzeiten der Stromverlauf im Versuchsrohr während des Entladungsaufbaues oszillographiert. Die Aufzeichnung der Oszillogramme erfolgte durch einen Kathodenstrahl-Oszillographen in Verbindung mit einer Kleinbildkamera. Es wurden zwei Philips-Nachbeschleunigungsrohre verwendet, von denen eines mit einem blauleuchtenden, das andere mit einem grün nachleuchtenden Schirm versehen war. Das erstere war weniger empfindlich auf Bildverzerrungen durch Schirmladungen, das letztere ergab höhere Schreibgeschwindigkeiten. Bei einer Nachbeschleunigungsspannung von 5 kV waren mit Agfa-Ultrarapid-Film bei einer Blendenöffnung von 1:3,5 Schreibgeschwindigkeiten von 20 km/s möglich, so dass einmalige Überschreibung der Oszillogramme meist genügte (vgl. ¹⁴⁾). Vorbelichtung des Schirmes war zur Erzielung hinreichender Helligkeiten wesentlich.

Die Schaltung der Messanordnung wurde auf Grund prinzipieller Überlegungen von STEENBECK¹⁵⁾ und nach längeren Vorversuchen gewählt. Sie musste insbesondere die Messung möglichst kurzer Zeiten (etwa 10^{-7} s) ermöglichen, was die Verwendung entsprechend trägheitsarmer Stromkreise bedingte. Weiter sollte zur Messung immer vom gleichen Anfangszustand ausgegangen werden. Endlich erwies es sich als wünschenswert, durch einen einzigen Schalter

gleichzeitig die Meßspannung anzulegen, das Zeitablenkgerät zu steuern und den Strahl kurzzeitig freizugeben. So konnte genügende Gleichzeitigkeit aller Impulse erreicht werden (vorzeitige Freigabe des Strahles z. B. durch eine Relaisanordnung ergab bei Messung kurzer Zeiten zu starke Verschleierung des Bildes). Fig. 1 zeigt — etwas vereinfacht — die wesentlichen Teile der verwendeten

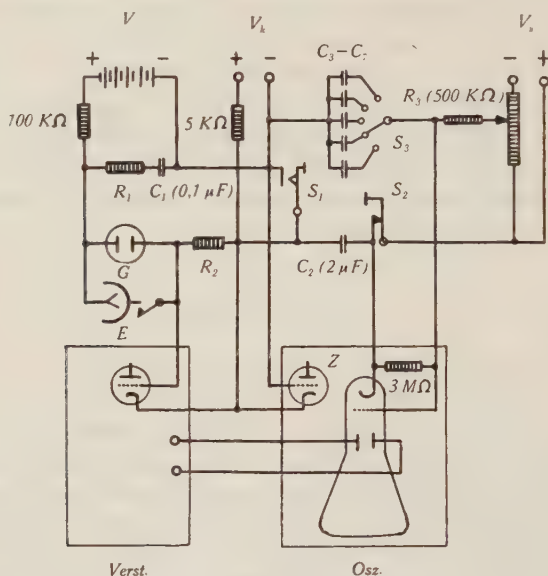


Fig. 1.

Schaltung der Messanordnung.

R_1 : 1–20 k Ω . R_2 : 200 Ω bis 150 k Ω . C_3 – C_7 : 1000 pf–2 μ f.

Schaltung. Als niederohmige Spannungsquelle diente die induktionsarme Kapazität C_1 , die durch eine Batterie über zwei Widerstände auf die gewünschte Spannung V aufgeladen war. Die Meßspannung V wurde in Serie mit einer Kompensationsspannung V_k über die Widerstände R_1 und R_2 an die Glimmröhre G angelegt. Zündung erfolgte, wenn mittelst des Schalters S_1 die Kompensationsspannung V_k kurzgeschlossen wurde, so dass die gesamte Spannung V am Versuchsrohr lag. Der nun anwachsende Glimmstrom erzeugte einen Spannungsabfall am Widerstand R_2 . Die Verstärkung des Impulses erfolgte in einem zweistufigen Breitbandverstärker, dessen Ausgangsspannung den vertikalen Ablenkplatten des Braunschen Rohres zugeleitet wurde.

Die Spannung V_k sperrte gleichzeitig den Strom in der Röhre Z des Zeitablenkgerätes. Wenn V_k durch S_1 kurzgeschlossen wurde,

begann sofort die horizontale Ablenkung des Strahles mit einer am Zeitablenkgerät des Oszillographen einstellbaren Geschwindigkeit.

Endlich bewirkte Schliessen des Schalters S_1 auch kurzzeitige Freigabe des Kathodenstrahles, der normalerweise durch die am Wehnelt-Zylinder des Rohres liegende negative Vorspannung V_s gesperrt war. Durch Schliessen von S_1 wurden nämlich Kathode und Wehnelt-Zylinder der Kathodenstrahlröhre über die Kapazität C_2 und eine mittelst S_3 wählbare Kapazität verbunden und die Sperrspannung V_s konnte den Kathodenstrahl erst wieder unterdrücken, nachdem sie die resultierende Kapazität über den Widerstand R_3 genügend aufgeladen hatte.

Zur Messung langer Zeiten und zur Vorbelichtung des Schirmes konnte der Strahl durch Öffnen des Schalters S_2 dauernd freigegeben werden.

Von entscheidender Bedeutung war natürlich, dass der Schalter S_1 die Schaltung auch innerhalb genügend kurzer Zeit vollzog und keinerlei Prellerscheinungen zeigte. Hinreichende Dämpfung fester Kontakte gelang nicht, aber eine Quecksilberwippe genügte den Anforderungen.

Zur Messung der Zünd- und Brennspannungen diente das in Fig. 1 angedeutete Fadenelektrometer E , zu dem auch Hilfsspannungen für Vergleichs- und Kompensationsmessungen zur Verfügung standen.

Der statistische Zündverzug wurde in bekannter Weise durch Bestrahlen der Kathode mit ultravioletterem Licht ausgeschaltet. Die so ausgelösten Photoelektronen bewirkten einen Vorstrom, der meist bei 80% der Zündspannung mit einem empfindlichen Galvanometer gemessen wurde (das Galvanometer konnte an der Stelle von R_2 eingeschaltet werden). Damit war die Berechnung des an der Kathode befreiten Fremdelektronenstromes und des nach Anlegen der Meßspannung innerhalb von Elektronenlaufzeiten vorhandenen Anfangsstromes möglich. Die Bestimmung des Anfangsstromes war ungenau; das ist aber, wie Rechnung und Experiment zeigen, von geringer Bedeutung, da er nur logarithmiert in die Ausdrücke für die Aufbauzeit eingeht (vgl. ¹⁵⁾ und ³⁾). Bei einzelnen Messungen wurde unter Zuhilfenahme einer etwas anderen Anordnung der Zündverzug nicht durch Vorbestrahlung, sondern durch eine sehr stromschwache Townsend-Entladung unterdrückt, wobei eine Photozelle den Strom begrenzte. Diese Methode war wegen des Auftretens von Kippschwingungen nicht allgemein anwendbar.

Die Messungen erfolgten bei möglichst kleinen Strömen in jenem Bereich, wo bei homogenem Feld die Raumladungen keine starken Feldverzerrungen bewirken. Der Endstrom der Messung war nach unten dadurch begrenzt, dass auch bei kurzen Aufbauzeiten der Ladungsumsatz zur Hervorrufung merklicher Spannungsänderungen z. B. an der Gitter-Kathodenkapazität der Eingangsröhre des Breitbandverstärkers genügen musste. Die meisten Messungen erfolgten in einem Strombereich von etwa 10^{-11} bis 10^{-4} A. (Über Einfluss von Verschiebungsströmen in den Kapazitäten der Messanordnung und des Rohres sowie über deren Trennung vom Ionenstrom, vgl. ¹⁵⁾ und ¹⁶⁾). Das Anlegen der Meßspannung innerhalb genügend kurzer Zeiten bereitete einige Schwierigkeiten. Die Dämpfungswiderstände R_1 und R_2 des Messkreises durften nämlich nicht beliebig zur Erzielung kurzer Halbwertzeiten verkleinert werden, da sich sonst der Einschaltvorgang immer mehr einem periodischen näherte. Die dabei während sehr kurzer Zeit an den Elektroden auftretenden Überspannungen konnten dann in gewissen Fällen

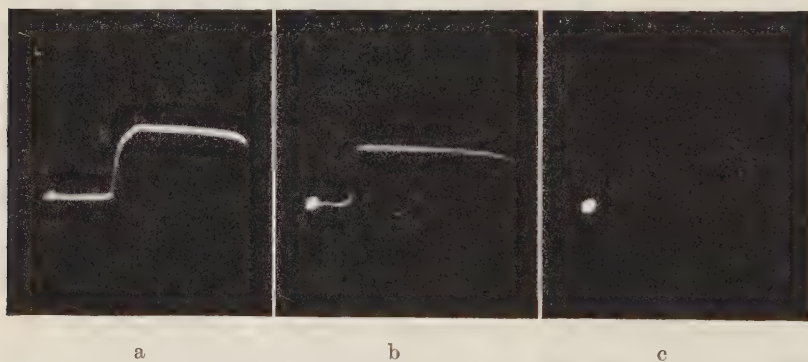


Fig. 2.

wesentliche Verfälschungen der Resultate ergeben. Der Effekt äusserte sich in einer Verkürzung der Aufbauzeiten bei Vergrößerung der Kompensationsspannung V_k . Es wurden daher je nach Größenordnung der zu untersuchenden Zeiten für R_1 Werte zwischen $800\ \Omega$ und $20\ k\Omega$, für R_2 Werte zwischen $300\ \Omega$ und $150\ k\Omega$ verwendet. Die sich so zusammen mit den Kapazitäten und Induktivitäten der Anordnung ergebende Geschwindigkeit des Stromanstieges an den Elektroden begrenzte die Anwendbarkeit der Anordnung auf Zeiten von einigen 10^{-7} s. Kürzere Zeiten konnten nurmehr qualitativ festgestellt werden.

Die Eichung der Anordnung erfolgte durch Probeaufnahmen mit periodischen Wechselströmen bekannter Frequenz.

Die Messwerte innerhalb einer Messreihe waren auf etwa $\pm 10\%$ reproduzierbar, wenn das gleiche Rohr mit der gleichen Gasfüllung verwendet wurde.

Bei Kathodenstrahlröhren mit nachleuchtendem Schirm machten sich Schirmladungen störend bemerkbar. Wenn der Strahl nach einer Dunkelpause plötzlich freigegeben wurde, verstrich nämlich eine ziemlich lange Zeit bis zur gleichmässigen Aufladung des Schirmes (ca. $1/10$ — 2 s). Vorher zeigten sich bei den meisten Röhren kräftige Bildverzerrungen, die das Rohr zur Messung kurzer einmaliger Vorgänge mit Nachbeschleunigungsspannung unwendbar machten. Der Effekt war von Rohr zu Rohr verschieden stark, und es musste aus einer grösseren Anzahl eines ausgewählt werden, das ihn wenig zeigte.

In Fig. 2 sind einige der aufgenommenen Oszillogramme reproduziert.

b) Die Versuchsröhre und Gase.

Für die Messungen wurden sechs verschiedene Versuchsröhre hergestellt. Drei davon hatten genau dieselbe, in Fig. 3 dargestellte Form und unterschieden sich nur in den Lineardimensionen der

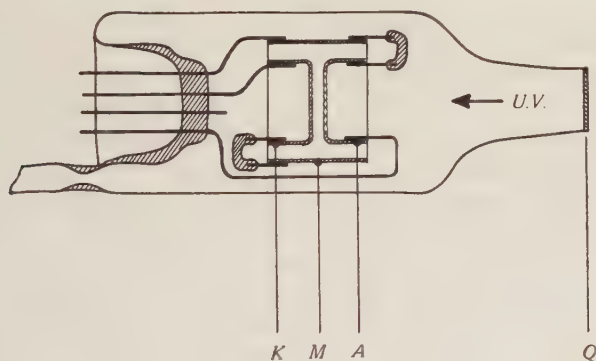


Fig. 3.

Elektroden, die von Rohr zu Rohr um den Faktor 2,5 variierten. Die Abstände von Anode und Kathode betrugen 1,3, 3,0 und 7,5 mm. Die Kathode *K* und die gelochte Anode *A* waren nach dem Rogowski-Profil¹⁷⁾ abgerundet. Ein Schutzmantel *M* schützte die Entladungsstrecke vor Wandladungseinflüssen. Die Kathode wurde durch die Öffnungen der Anode und durch das Quarzfenster *Q* mit ultravioletttem Licht bestrahlt. Als Elektrodenmaterial wurde Nickel verwendet.

Diese Rohre dienten der Untersuchung der Aufbauzeiten bei homogenem Feld und kleinen Überspannungen. Sie gestatteten gleichzeitig eine Prüfung des zeitlichen Ähnlichkeitsgesetzes.

Ein viertes Rohr war sehr ähnlich konstruiert, aber die Anode war durch zwei getrennt herausgeführte Spitzen aus feinem Nickeldraht (\varnothing 0,2 mm) ersetzt, deren Abstände von der Kathode 0,5 und 5 mm betrugen. Dieses Rohr diente den Messungen bei inhomogenen Feldern.

Zwei weitere Rohre waren mit verschiebbaren Elektroden von ca. 40 mm Durchmesser ausgerüstet. Sie wurden für Messungen der Abstandsabhängigkeit der Aufbauzeit bei konstanter Feldstärke verwendet. Die Verschiebung der Elektroden erfolgte durch eine mittelst eines Magneten betätigte Schraube; die Konstruktion dieses Mechanismus entsprach der von MEILI¹⁸⁾ angegebenen. Auf eine Unterteilung der Elektroden wie bei MEILI und auf einen Wandladungsschutz wurde hier verzichtet. Elektrodenmaterial war wiederum Nickel, das für einige Messungen mit dem durch thermischen Zerfall von Bariumazid erhaltenen Gemisch von metallischem Barium und Bariumnitrid überzogen war.

Die Rohre waren in Kolben aus Jenaer-Gerätéglass oder Pyrex eingeschmolzen und die Quarzfenster wurden mittelst der zehn Zwischengläser von Schott & Gen. aufgesetzt. Als Durchführungs-materialien dienten Molybdän- oder gehämmerte Wolframdrähte. Entgasung und Evakuierung erfolgten mit den üblichen Methoden der Hochvakuumtechnik. Die Nickelteile wurden zunächst in Salpetersäure (40%) gebeizt, dann in gewöhnlichem und destilliertem Wasser gründlich gespült und anschliessend während einiger Stunden bei 900° C im Hochvakuum entgast. Vor dem Füllen wurde das fertige Rohr wiederum während mehrerer Stunden bei 520° C an der Pumpe ausgeheizt und die Metallteile wurden neuerdings im Hochfrequenzfeld bis zur Grenze des Verdampfens erhitzt. Quecksilberdämpfe der Diffusionspumpe und andere Dämpfe wurden durch eine Kühlfalle mit flüssiger Luft oder Kohlensäureeis ausgefroren; zwischen Kühlfalle und Versuchsrohr befanden sich keinerlei Schiffe und Hahnen. Die verwendeten Gase wurden in abgeschmolzenen Glasflaschen von 1 Liter Inhalt gekauft. Argon, Krypton und Wasserstoff stammten von der Firma Griessogen. Neon, Helium und ein weiterer Teil des Argons kamen von der amerikanischen Linde-Gesellschaft und waren als spektralrein bezeichnet. Xenon wurde bei der Philips-Lampen A.G. in Eindhoven bezogen und sollte eine Reinheit von mindestens 99,9% aufweisen. Stickstoff wurde durch Zerfall von Natriumazid gewonnen. Eine

Nachreinigung der Gase erfolgte nur bei Krypton und Xenon durch Ausfrieren, während sich bei den andern Gasen die Massnahmen auf möglichste Vermeidung nachträglicher Verunreinigung beschränkten. So wurden nicht nur die Rohre, sondern auch die Ansatzstutzen der Edelgasflaschen und alle Teile, die mit dem Edelgas während längerer Zeit in Berührung standen, nach Möglichkeit entgast.

3. Berechnung der Aufbauzeiten.

TANK und GRAF¹⁹⁾ zeigten erstmals experimentell, dass der Stromanstieg bei der Niederdruckentladung in reproduzierbarer Weise erfolgt. Die wichtigsten experimentellen Unterlagen über den Aufbau von Niederdruckentladungen sind in einer Arbeit von STEENBECK¹⁵⁾ enthalten, während SCHADE³⁾ in einigen Spezialfällen die Abhängigkeit von der Überspannung untersucht. Berechnet wurde die Aufbauzeit von verschiedenen Autoren, so z. B. von STEENBECK, SCHADE und von BARTHOLOMEYCZYK¹⁾. STEENBECK und SCHADE rechnen mit Volumionisation (α) und mit Elektronenbefreiung durch positive Ionen an der Kathode (γ). BARTHOLOMEYCZYK geht von den Trägerbilanzen aus, die er integriert, und er lässt auch Elektronenbefreiung an der Kathode durch das Eigenlicht der Entladung zu. Da Mitberücksichtigung einer Photoionisierung im Gasraum bei nicht zu grosser Absorption zu sehr ähnlichen Ergebnissen führen muss, ist diese Rechnung für uns brauchbar. Sie sei daher kurz wiedergegeben, wobei wir auf die für uns unwesentliche Verfeinerung durch Einbeziehung der Wanddiffusion verzichten. Wir rechnen also mit einer seitlich unendlich ausgedehnten Entladung und setzen zunächst voraus, dass die Rückwirkung, die zur Elektronennachlieferung führt, an der Kathode stattfinden soll. Den Ladungsträgern sollen die einheitlichen Geschwindigkeiten v_+ und v_- zukommen — eine Annahme, die im Hinblick auf die etwa 10^3 Zusammenstösse, die ein Träger auf seinem Weg von einer Elektrode zur andern erlebt, sehr weitgehend gerechtfertigt ist. Die Trägerkonzentrationen bezeichnen wir, wie eingangs erwähnt, mit n_+ und n_- , die Stromdichten mit i_+ und i_- und die Koeffizienten der einzelnen Elementarprozesse mit α , ε , γ und δ . x -Achse des Koordinatensystems und Feld seien parallel.

Die Bilanzgleichungen lauten dann bekanntlich

$$\frac{\partial n_-}{\partial t} = - \frac{\partial}{\partial x} (v_- n_-) + \alpha v_- n_- \quad (1)$$

$$\frac{\partial n_+}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} (v_+ n_+) + \alpha v_- n_- \quad (2)$$

Einführung der Stromdichten ergibt

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{i_-}{v_-} \right) = - \frac{\partial i_-}{\partial x} + \alpha i_- \quad (3)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{i_+}{v_+} \right) = \frac{\partial i_+}{\partial x} + \alpha i_- \quad (4)$$

BARTHOLOMEYCZYK integriert mit dem Ansatz

$$i_-(x, t) = e^{\lambda t} \cdot j_-(x) \quad (5)$$

$$i_+(x, t) = e^{\lambda t} \cdot j_+(x) \quad (6)$$

Er findet unter Verwendung der Abkürzung $\frac{1}{v_+} + \frac{1}{v_-} = \frac{1}{v}$

$$j_-(x) = C \cdot e^{\int_0^x \left(\alpha - \frac{\lambda}{v} \right) dx} \quad (7)$$

$$j_+(x) = e^{\int_0^x \frac{\lambda}{v_+} dx} \left(C' - C \int_0^x \alpha e^{\int_0^x \left(\alpha - \frac{\lambda}{v} \right) dx} dx \right) \quad (8)$$

Die Randbedingungen hängen nun davon ab, welche Effekte für die Elektronenbefreiung an der Kathode angenommen werden. Wir rechnen hier mit Rückwirkung durch positive Ionen ($\alpha - \gamma$ -Effekt), durch Photoeffekt ($\varepsilon - \delta$ -Effekt) und mit einem durch Fremdlicht an der Kathode ausgelösten Vorstrom J_0 . (Berücksichtigung der Elektronenauslösung durch herandiffundierende metastabile Atome [M. A.] ist in einfacher Weise nicht möglich, da Annahme einer einheitlichen Driftgeschwindigkeit sinnlos wäre. Immerhin ist der Einfluss bei den Messungen erkennbar; wir kommen darauf zurück.)

Die Randbedingungen lauten dann:

an der Kathode

$$i_-(0) = i_0 + \gamma i_+(0) + g \cdot \delta \int_0^d i_-(x) \varepsilon(x) e^{-kx} dx \quad (9)$$

oder

$$j_-(0) = \frac{i_0}{e^{\lambda t}} + \gamma j_+(0) + g \delta \int_0^d j_-(x) \varepsilon(x) e^{-kx} dx \quad (10)$$

an der Anode

$$i_+(d) = 0; \quad j_+(d) = 0. \quad (11)$$

Daraus folgt

$$1 = \frac{i_0}{i_-(0)} + \gamma \int_0^d \alpha e^{\int_0^x \left(\alpha - \frac{\lambda}{v} \right) dx} dx + g \delta \int_0^d \varepsilon(x) e^{\int_0^x \left(\alpha - \frac{\lambda}{v_-} \right) dx - kx} dx. \quad (12)$$

Gleichung 12 ist die verallgemeinerte Townsendsche Zündbedingung, die wir diskutieren werden. Hier sei nur bemerkt, dass die Glieder der rechten Seite der Reihe nach vom Fremdstrom, von der Elektronenbefreiung durch positive Ionen und von der Photorückwirkung herrühren. Einer eventuellen Absorption des Entladungslichtes im Gasraum ist durch den Faktor e^{-kx} Rechnung getragen (vgl. ²⁰)).

4. Abstandsabhängigkeit der Aufbauzeit im homogenen Feld bei konstanter Feldstärke. Rückwirkungsmechanismus. Messergebnisse.

a) Abstandsabhängigkeit.

Die nachfolgenden Untersuchungen machen von der zuerst von ROGOWSKI²⁾ erkannten Tatsache Gebrauch, dass unter Umständen die Instabilität eines an sich untergeordneten Rückwirkungsmechanismus für die Aufbauzeit einer Entladung ausschlaggebend sein kann. Unter den speziellen Voraussetzungen unserer Rechnung und bei unwesentlichem Einfluss der Absorption wäre es, wie BARTHOLOMEJCZYK¹⁾ dargelegt hat, möglich, durch Messung der Abstandsabhängigkeit den Anteil verschiedener Elementarprozesse an der Rückwirkung genau zu trennen. Vor der Diskussion von Gleichung 12 sei diese Möglichkeit anschaulich dargelegt.

Wir denken uns ein Rohr mit planparallelen Elektroden, deren Abstand variiert werden kann. Bei Vergrößerung des Abstandes werde auch die angelegte Spannung vergrößert, so dass die Feldstärke konstant bleibt. Wir messen nun die Anwachsgeschwindigkeit des Entladungsstromes nach Anlegen der Spannung. Bei kleinen Abständen reichen die Lawinenprodukte eines an der Kathode startenden Elektrons nicht aus, um über die verschiedenen Wege der Rückwirkung für mindestens ein Nachfolgeelektron zu sorgen; die Zündbedingung ist noch nicht erfüllt und eine selbständige Entladung ist nicht möglich.

Das ändert sich mit Erreichen eines zur Zündung hinreichenden Minimalabstandes d_z . Der Strom kann zunächst aber nur mit Hilfe aller Rückwirkungselektronen anwachsen; auch jene, die durch den langsamsten der in Frage kommenden Rückwirkungsprozesse ausgelöst werden, sind nötig. Dieser langsamste Prozess ist daher vorläufig im wesentlichen für die Aufbauzeit massgebend. Wenn wir entsprechend den vereinfachenden Voraussetzungen der vorstehenden Rechnung nur Oberflächenwirkungen an der Kathode in Betracht ziehen, bedeutet das in unserem Falle, dass der Strom erst anwächst, wenn auch eine genügende Anzahl metastabile Atome,

die grösstenteils im Anodengebiet entstehen, zur Kathode diffundiert ist.

Bei weiterer Vergrösserung von Abstand und angelegter Spannung wächst die Zahl der pro Lawine erzeugten Elementarprozesse, und für einen bestimmten Abstand d_{Ion} sind die Lawinen so gross, dass sie auch ohne Mithilfe der Metastabilen über die übrigen Wege der Rückwirkung genügend Nachlieferungselektronen bilden. Der Aufbau hängt jetzt im wesentlichen nur noch von der Laufzeit der positiven Ionen ab. Er vollzieht sich innerhalb bedeutend kürzerer Zeiten als vorher und M. A. kommen in der ersten Phase der Entladung kaum mehr zur Geltung.

Bei weiterer Steigerung von Elektrodenabstand und angelegter Spannung kommt bei d_{phot} der Moment, wo die Photonachlieferung allein die Zündbedingung erfüllen könnte und eine rein photoelektrische Entladung möglich würde. Jetzt kann der Aufbau innerhalb von einigen Elektronenlaufzeiten vor sich gehen, ohne auf die Mithilfe der relativ trägen positiven Ionen zu warten und die Aufbauzeit müsste sich nochmals um etwa zwei Grössenordnungen verkürzen.

Es ist also jeweils beim Überschreiten eines Elektrodenabstandes, der den Entladungsaufbau von einem relativ langsamen Elementarprozess unabhängig macht, eine stufenartige Verkürzung der Aufbauzeit (resp. Vergrösserung der reziproken Zeitkonstanten λ in Gl. 12) zu erwarten. Aus der Lage der entsprechenden Stufen kann auf die Bedeutung der einzelnen Elementarprozesse auch im stationären Fall geschlossen werden. Fig. 4 (S. 326) zeigt das Ergebnis der Rechnung für den Übergang vom α - γ -Effekt zum Photomechanismus. (Die Ionengeschwindigkeiten wurden dabei nach einer Formel von HERSHEY berechnet²¹⁾ ²²⁾.) Die Wirkung der M. A., die rechnerisch sehr kompliziert zu behandeln wäre, berücksichtigen wir vorläufig nicht.

Wir kommen nun zur Diskussion von Gl. 12. Für homogene Felder lassen sich die Integrale ausführen, da α , ε und die Trägergeschwindigkeiten vom Ort unabhängig werden. Man findet

$$1 = \frac{i_0}{i(0)} + \frac{\alpha\gamma}{\alpha - \frac{\lambda}{v_-}} \left\{ e^{\left(\alpha - \frac{\lambda}{v_-}\right)d} - 1 \right\} + g\varepsilon\delta \frac{1}{\alpha - k - \frac{\lambda}{v_-}} \left\{ e^{\left(\alpha - k - \frac{\lambda}{v_-}\right)d} - 1 \right\}. \quad (13)$$

Das erste Glied rechts kommt vom Fremdstrom J_0 , der nur solange von Bedeutung ist, als er einen merklichen Teil des gesamten Kathodenstromes $J_-(0)$ darstellt. Für unsern Fall schwacher Fremdbestrahlung vernachlässigen wir dieses Glied.

Wenn wir zunächst auch von der Photorückwirkung absehen ($\delta = 0$), verbleibt

$$1 = \frac{\alpha \gamma}{\alpha - \frac{\lambda}{v}} \left[e^{\left(\alpha - \frac{\lambda}{v} \right) d} - 1 \right]. \quad (14)$$

Diese Gleichung, die verallgemeinerte Townsendsche Zündbedingung für Rückwirkung durch positive Ionen, wurde schon durch STEENBECK¹⁵⁾ unter denselben Voraussetzungen abgeleitet. STEENBECK hat auch die Abhängigkeit von λ vom Elektrodenabstand bei konstanter Feldstärke ausführlich diskutiert und gezeigt, dass die Aufbauzeit für sehr grosse Abstände einem Grenzwert zustrebt. Seine entsprechenden Messungen erfolgten dann allerdings nur in einem Abstandsbereich, in dem ein Umschlag zum Photomechanismus noch nicht eintrat, und so fand er die Annahme einer Rückwirkung durch positive Ionen bestätigt. Seine Resultate sagen aber nichts darüber aus, ob dieser Mechanismus allein massgebend ist.

Für den zur Zündung minimal notwendigen Abstand würde $\lambda = 0$ und Gl. 14 geht in die bekannte Zündbedingung $\gamma(e^{\alpha d} - 1) = 1$ über. Für grosse Elektrodenabstände strebt λ gegen den Wert

$$\lambda_{\text{Ion}}(\infty) = v [\alpha(1 + \gamma)] \cong \alpha v_+. \quad (15)$$

Im Gegensatz dazu liefert die vollständige Gleichung 12 für sehr grosse Abstände und bei nicht zu starker Lichtabsorption

$$\lambda_{\text{komb}}(\infty) \cong (\alpha - k) v_-. \quad (16)$$

Die kombinierte Rückwirkung führt also bei grossen Abständen zu viel kürzeren Aufbauzeiten, als die Rückwirkung durch positive Ionen allein, da λ im einen Falle in Verbindung mit Elektronengeschwindigkeiten, im anderen Falle aber nur in Verbindung mit Ionengeschwindigkeiten auftritt.

Zur zahlenmässigen Rechnung vernachlässigen wir in Gl. 13 auch noch λ/v , resp. λ/v_- im Nenner. Weiter ersetzen wir $(e^{(\alpha - \lambda/v) d} - 1)$, resp. $(e^{(\alpha - k - \lambda/v_-) d} - 1)$ durch $e^{(\alpha - \lambda/v) d}$ und $e^{(\alpha - k - \lambda/v_-) d}$. Der dadurch begangene Fehler bleibt innerhalb weniger Prozente und liegt weit unter der Messgenauigkeit. $1/v$ ist mit $1/v_+$ praktisch identisch. Damit erhalten wir aus Gl. 13

$$1 = \gamma e^{\left(\alpha - \frac{\lambda}{v_+} \right) d} + \frac{g \epsilon \delta}{\alpha - k} e^{\left(\alpha - k - \frac{\lambda}{v_-} \right) d}. \quad (17)$$

Im Gebiete vor dem Umschlag zum Photoeffekt ist λ noch durch die Laufzeiten der positiven Ionen bedingt und von der Grössenordnung αv_+ . Hier und bis zum Umschlag können wir λ/v_- gegenüber α vernachlässigen und damit Gl. 17 nach λ auflösen. Wir finden

$$\lambda_{\text{Ion}} = v_+ \left\{ \alpha - \frac{1}{d} \ln \frac{1}{\gamma} \left(1 - \frac{g\epsilon\delta}{\alpha-k} e^{(\alpha-k)d} \right) \right\} \quad (18)$$

im Gebiet mit massgebender Ionenrückwirkung.

Nach dem Umschlag ist praktisch nurmehr das photoelektrische Glied von Bedeutung und hier gilt näherungsweise

$$\lambda_{\text{phot}} = v_- \left\{ \alpha - k - \frac{1}{d} \ln \frac{\alpha-k}{g\epsilon\delta} \right\}. \quad (18')$$

Die aus Gl. 18 und 18' berechnete Abstandsabhängigkeit zeigt Fig. 4 (S. 326) für einen speziellen Fall. Der Verlauf für reinen Ionenmechanismus ist punktiert, während die gestrichelte Linie bei kombinierter Rückwirkung auch noch den Einfluss der Fremdelektronenemission J_0 an der Kathode berücksichtigt und also unsern Messungen entspricht, soweit die vereinfachenden Annahmen über den Mechanismus zulässig sind (der Fremdstrom bewirkt nach Anlegen der Meßspannung innerhalb von Elektronenlaufzeiten das Vorhandensein eines abstandsabhängigen Anfangsstromes).

*b) Raum oder Oberflächenwirkungen des Entladungslichtes?
Einfluss der Absorption.*

Unsere Versuche können aber die Frage nicht entscheiden, ob die Bildung der photoelektrisch erzeugten Elektronen im wesentlichen im Gasraum oder an der Kathodenoberfläche erfolgt. Denn die Annahme einer Photoionisierung im Gasraum statt an der Kathodenoberfläche führt bei nicht allzu starker Absorption zu quantitativ und qualitativ sehr ähnlichen Ergebnissen, wie die oben angeführte Rechnung (vgl. 2)). Der physikalische Grund dafür liegt in der Tatsache, dass auch bei Photoionisierung des Gases denjenigen Elektronen, die in Kathodennähe entstehen, die weitaus grösste Bedeutung für die gesamte Ionenbildung zukommt. Beim Auftreten einer sehr starken Absorption in Verbindung mit Photoionisierung im Gasraum ($k \gtrsim \alpha$) hätten anderseits die photoelektrischen Wirkungen in der Entladung in immer geringerem Masse den Charakter einer eigentlichen Rückwirkung. Denn die Photoelektronen entstanden nun in unmittelbarer Nähe des Ortes der Lichtanregung und könnten wohl zur Verstärkung der Lawine beitragen, nicht aber allein in Verbindung mit der Stossionisierung Instabilität und

Selbständigkeit der Entladung bewirken. Sie kämen in diesem Fall in unseren Versuchen nicht zur Geltung, da bei unserer Methode der Umschlag zu Photozeiten nur auf Grund einer eigentlichen Rückwirkung eintreten kann.

Sowohl oberflächliche als auch räumliche Wirkungen des Entladungslichtes sind heute in selbständigen und unselbständigen Formen von Gasentladungen bekannt (für ältere Literaturangaben sei auf die in Abschnitt 1 erwähnten zusammenfassenden Arbeiten verwiesen). Es sei nur an die gasionisierende Strahlung erinnert, die bei der Ausbildung des Funkenkanales massgebenden Einfluss ausübt ⁴⁾ ⁵⁾. Photoelektrische Wirkungen sind auch bei Coronaentladungen ²³⁾ ²⁴⁾ ⁴⁷⁾ und Zählrohrentladungen ²⁵⁾ ⁴⁶⁾ beobachtet worden.

SCHWIECKER²⁶⁾ weist in einer unselbständigen Entladung in Luft und Wasserstoff lichtelektrische Gas- und Oberflächenwirkungen nach (er findet in Übereinstimmung mit andern Autoren in H_2 einen geringeren Absorptionskoeffizienten als in Luft). Die Arbeiten von COSTA²⁷⁾ beschäftigen sich mit unselbständigen Entladungen und COSTAS Resultate für H_2 zeigen gleich wie unsere Messungen den ausserordentlich grossen Einfluss des Photoeffektes für die Rückwirkung in diesem Gase (in H_2 dürfte Photoelektronen-auslösung an der Kathode massgebend sein). Zu erwähnen sind auch eine Notiz von CRAVATH²⁸⁾ und eine Arbeit von DECHÈNE²⁹⁾. Diese Autoren finden in Luft von Atmosphärendruck Strahlungskomponenten verschiedener Wellenlängen. Nach CRAVATH hat eine kurzwellige Komponente bei 760 Tor einen Absorptionskoeffizienten von 10 cm^{-1} und gibt eher Gasionisierung, während die andere, langwelligere Komponente etwa fünfmal weniger absorbiert wird und Photoeffekt an den Elektroden bewirkt. CHRISTOPH²⁴⁾ dagegen findet bei Untersuchungen an Coronaentladungen bei niederem Druck sehr viel grössere Werte des Absorptionskoeffizienten ($53,1\text{ cm}^{-1}$ in Luft und $27,6\text{ cm}^{-1}$ in H_2 , bezogen auf 760 Tor). Endlich schliesst eine Gruppe von Autoren aus der Feldstärkeabhängigkeit von γ auf den Rückwirkungsmechanismus (so z. B. FÜCKS und KETTEL³⁰⁾, SCHADE³¹⁾, SCHÖFER³²⁾). Beachtenswert ist der Versuch von SCHADE, den Spannungszusammenbruch bei grösserer Stromdichte durch eine mit starker Absorption des an der Kathode wirksamen Lichtes verbundene Gasionisierung zu erklären. (Mit wachsendem Strom würde ja der Entstehungsort der Photonen nach der Kathode hin verlegt, so dass die Absorption nun weniger zur Geltung käme und die Rückwirkung unter günstigeren Bedingungen vor sich ginge.)

Für uns von grösserer Bedeutung sind Beobachtungen von GEBALLE³³⁾ und FISHER³⁴⁾, welche die Wirkungen des Lichtes einer Townsend-Entladung auf einer Photoelektrode aus Messing untersuchen und Messungen in Luft, N_2 , H_2 und Ar bei niederen Drucken ausführen. Nach FISHER erreichen nur in H_2 energiereiche Photonen die Messingschicht, während in Luft und Argon die Absorption so stark wäre, dass trotz der empfindlichen Versuchsanordnung kein Photostrom an der Nachweiselektrode gemessen werden konnte. In diesem Zusammenhang sind auch Beobachtungen angeführt, nach denen in Wasserstoff die Bildung der Funkenkanäle erschwert ist (WEISSLER³⁵⁾). Die Ionisierungswirkungen kommen nämlich bei H_2 infolge der geringeren Absorption in relativ grosser Entfernung vom Entstehungsort der Photonen zur Geltung, und daher bilden sich in der Lawine nur schwächere Raumladungsfelder aus. Die Auffassung von FISHER widerspricht also derjenigen von ROGOWSKI²⁾, der bei niederen Drucken nur einen geringen Einfluss der Absorption vermutet.

Wie gesagt, können unsere Messungen die Frage nach dem Entstehungsort der photoelektrisch erzeugten Rückwirkungslektronen nicht entscheiden. Dazu wären weitere Versuche, z. B. über den Einfluss von Geometrieverhältnissen oder Oberflächeneigenschaften notwendig, wobei die von uns verwendete Methode brauchbar wäre. Die in der Literatur vorliegenden experimentellen Unterlagen sind zur Zeit noch ungenügend oder unsicher. Die oben angeführte Rechnung ist also zunächst mehr deshalb von Wert, weil ihr eine allgemeinere Bedeutung zukommt, als dies den etwas speziellen physikalischen Voraussetzungen entspricht. Sie gibt nämlich die Verhältnisse für jeden photoelektrischen Effekt der Elektronenauslösung annähernd richtig wieder, sofern ihm der Charakter einer eigentlichen Rückwirkung zukommt.

Ganz abgesehen von der Frage nach dem genauern Hergange der Photorückwirkung sind aber Untersuchungen über die Abstandsabhängigkeit der Aufbauzeit von Interesse. Denn sie können Aufschluss geben über die generelle Bedeutung des Photoeffektes in den untersuchten Formen der Niederdruckentladung. (Auch darüber liegen in der Literatur im allgemeinen nur recht widerspruchsvolle Angaben oder Vermutungen von sehr hypothetischer Natur vor, die meist auf indirektem Wege gefunden wurden.) Die Versuche zeigen auch die Brauchbarkeit der Methode, die wohl zur Klärung verschiedener ungelöster Fragen über den Mechanismus der Gasentladung dienen könnte.

Ein Rückschluss auf stromschwache stationäre Entladungen ist unabhängig vom Entstehungsort der Rückwirkungselektronen in einer gewissen Näherung zulässig. Wenn im Folgenden gesagt wird, dass x Prozent der Rückwirkungselektronen vom Photoeffekt herühren, dann bezieht sich das selbstverständlich auf eine stationäre Townsend-Entladung mit entsprechenden Feld-, Geometrie- und Materialverhältnissen, und die Aussage umfasst auch nur eigentliche Rückwirkungsprozesse, die Photoelektronen in Kathodennähe liefern.

c) Wirkung der metastabilen Atome (M. A.).

Auch der Einfluss metastabiler Effekte im Gasraum und an der Kathode ist, wie Reststromversuche beweisen, nicht ausser acht zu lassen (vgl. z. B. GRANOWSKI³⁶), PAETOW³⁷), HOFFMANN³⁸)). Die Wirkung M. A. ist in einer zusammenfassenden Arbeit von ROGOWSKI¹³) eingehend behandelt und das Diffusionsproblem ist dort für den stationären Fall gelöst. Im nichtstationären Fall wäre die genaue Form der Stufe, die dem Überflüssigwerden der metastabilen Rückwirkung für den Aufbau entspricht, sehr kompliziert zu behandeln. Aber schon Kenntnis ihrer Breite lässt zumindest grössenordnungsmässige Rückschlüsse auf den stationären Fall zu. Jedenfalls ist die Existenz einer solchen Stufe nicht, wie BARTHOLOMEYCZYK¹) meint, davon abhängig, dass die Rückwirkung durch M. A. jene durch pos. Ionen an Bedeutung überträfe. Während räumliche Effekte (gegenseitiger Stoss M. A.) wiederum nur in sehr beschränktem Umfang den Charakter einer eigentlichen Rückwirkung haben und daher in unseren Kurven nicht zum Ausdruck kommen können, scheint sich die Elektronenauslösung durch M. A. an der Kathode bemerkbar zu machen. Es wurden nämlich in der Nähe des Zündabstandes sehr lange Aufbauzeiten gemessen und dementsprechend weisen die $\frac{1}{t}(U)$ -Kurven zu Beginn einen fast horizontalen Anfangsteil auf, werden dann steiler und gehen über einen Wendepunkt in jene Form über, die auf Grund der Rückwirkung durch positive Ionen zu erwarten ist. (Bei den in Fig. 5—9 dargestellten Messresultaten ist das Anfangsgebiet der bessern Anschaulichkeit wegen jeweils mit zehnfach vergrösserter $\frac{1}{t}$ -Achse dünn eingezeichnet.) Die metastabilen Wirkungen sind — absolut genommen — bei He am grössten und bei den schweren Edelgasen am kleinsten — vielleicht entsprechend den mit wachsendem Atomgewicht abnehmenden metastabilen Anregungsenergien (21 V bei He, 16 V bei Ne, um 10 V bei den übrigen Edelgasen). Im statio-

nären Zustand dürfte für Edelgase der Anteil der M. A. am Rückwirkungsprozess etwa 5—25% betragen.

Bei H_2 wird — entsprechend dem Fehlen M. A. (vgl. ³⁹⁾ ⁴⁰⁾ ⁴¹⁾) — auch keine metastabile Anfangsstufe beobachtet und es treten keine so langen Aufbauzeiten für kleine Überspannungen auf.

d) Bemerkungen zu den Messresultaten.

Messungen der Aufbauzeit für konstante Feldstärke erfolgten in He, Ar, Kr, Xe, N_2 und H_2 sowie in Ne-Ar-Gemisch. Fig. 5—12 zeigen die (durch Mittelung aus mehreren Messreihen) gefundenen Resultate. Dabei wurden die *reziproken Werte* der gemessenen Aufbauzeiten aufgetragen, die der reziproken Zeitkonstanten λ bis auf die Korrektur für den abstandsabhängigen Anfangsstrom proportional sind. Bei Gültigkeit des für die Rechnung vorausgesetzten Mechanismus müsste man also Abhängigkeiten erwarten, die der gestrichelten Kurve in Fig. 4 entsprechen.

Der Charakter der Kurven entspricht tatsächlich den Erwartungen. Im Gebiete des α - γ -Mechanismus, wo eine quantitative Prüfung möglich ist, wurde auch befriedigende Übereinstimmung mit den auf Grund der α -Werte*) und Ionengeschwindigkeiten**) berechneten Zeiten gefunden. Der Übergang vom Ionen- zum Photomechanismus erfolgt nicht mit der rechnerisch zu erwartenden Schärfe. Der Grund dafür ist zu einem wesentlichen Teil bei der elektrischen Trägheit der Apparatur zu suchen, die von den zur Erreichung brauchbarer Versuchsbedingungen unvermeidlichen Dämpfungswiderständen herrührt. Weiter tragen die in der Rechnung nicht berücksichtigten photoelektrischen und metastabilen Effekte im Gasraum zur Verwischung des Umschlages bei (statistische Schwankungen in den Trägergeschwindigkeiten dürften, wie erwähnt, keine Rolle spielen). Der für rein photoelektrische Rückwirkung kritische Minimumabstand kann also nur annähernd bestimmt werden. Bei den folgenden approximativen Zahlangaben über den prozentualen Anteil des Photoeffektes an der Gesamtrückwirkung im stationären Fall wurde angenommen, dass sicher Photomechanismus ausschlaggebend war, wenn die gemessene Aufbauzeit den Wert der Laufzeit eines Ions von der Anode zur Kathode

*) Zusammenstellung der massgebenden Zahlwerte bei DRUYVESTYEN und PENNING³⁾.

**) Die Ionengeschwindigkeiten können auf Grund der Beweglichkeiten abgeschätzt oder nach einer Formel von HERSHEY^{21), 22)} berechnet werden. Unsere Ergebnisse stehen in befriedigender Übereinstimmung mit denen von STEENBECK¹⁵⁾.

unterschritt. Dagegen wurde sicher wesentliche Mitwirkung der positiven Ionen auch beim Aufbau angenommen, solange die tatsächlich gemessenen $\frac{1}{f}$ -Werte sich von der für reine Ionenrückwirkung extrapolierten Kurve nicht mehr als um einen Faktor 2 unterschieden.

Die Messreihen wurden meist bei einem Elektrodenabstand d_z von 2,8 oder 3,5 mm begonnen und der Gasdruck wurde so gewählt, dass dieser Abstand merklich grösser als der Minimumabstand war. Der Abstand d_z , bei dem gerade die Zündspannung an das Rohr angelegt wurde, ist bei jeder Kurve angegeben. Die Gasdrucke sind auf 0° C umgerechnet. Ein Querschnitt der meist verwendeten Elektroden ist in Fig. 5 eingezeichnet. Die Anode war mit ca. 350 Löchern von 0,8 mm \varnothing versehen, durch die das ultraviolette Licht auf die Kathode auftreffen konnte. Es löste dort einen Photostrom von etwa $5 \cdot 10^{-13}$ A aus, der infolge Gasverstärkung je nach dem jeweiligen Abstand einen Anfangsstrom von $1-5 \cdot 10^{-11}$ A lieferte (dieser war innerhalb Elektronenlaufzeiten ausgebildet).

Die Ergebnisse sind für die einzelnen Gase sehr verschieden.

Überhaupt keine photoelektrischen Instabilitäten zeigen in dem untersuchten Spannungsbereich (bis 630 V) He, Ne-Ar-Gemisch und N₂. Kurvencharakter und Grösse der Aufbauzeiten sprechen dafür, dass in diesen Gasen bei den vorliegenden Bedingungen positive Ionen und M. A. für die Rückwirkung massgebend sind, und der Anteil des Photoeffektes dürfte kleiner als 0,1% sein. Auch Verwendung von Ba-Elektroden ergab bei He keinen Umschlag.

Bei Argon liegt für Nickelelektroden der Umschlag bei verschiedenen Anfangsverhältnissen immer etwa im Gebiet des doppelten Zündabstandes. Lichtwirkungen dürften 1,6–7% der gesamten Rückwirkung ausmachen (im stationären Fall!). Bei Verwendung von Barium-Kathode änderte sich die Umschlagspannung nicht stark, trotzdem nun bessere lichtelektrische Ausbeute der Kathode zu erwarten wäre (der Anteil des Photoeffektes am Rückwirkungsmechanismus ist bei Ba-Elektroden also noch kleiner). Ob diese Beobachtung für Lichtwirkung im Gasraum spricht, sei hier dahingestellt.

Bei den schweren Edelgasen tritt photoelektrische Instabilität schon früher auf (Kr ca. 5%, Xe ca. 15% Photoanteil), während die langen, wohl auf M. A. zurückzuführenden Aufbauzeiten auf einen kleineren Spannungsbereich beschränkt sind, als bei He, Ne-Ar-Gemisch, und Ar.

Fig. 4–12.

Abhängigkeit der Aufbauzeit vom Elektrodenabstand für konstante Feldstärke.

Die Aufbauzeiten, deren reziproke Werte ($1/t$) als Ordinaten aufgetragen sind, beziehen sich auf einen Strombereich von $10^{-11} - 10^{-4}$ A. Die angelegte Spannung U ist dem Elektrodenabstand proportional; d_z bezeichnet also Zündabstand und Zündspannung. Bei Fig. 5–9 ist der Anfangsteil der Kurven mit 10fach vergrößerter $1/t$ -Achse dünn eingezeichnet. Die Gasdrucke sind auf 0°C umgerechnet.

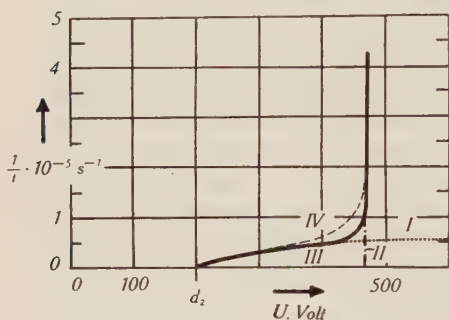


Fig. 4.

Berechnete Abstandsabhängigkeit.

Kurve I: reine Ionenrückwirkung.

Kurve II: reine Photorückwirkung.

Kurve III: kombinierte Rückwirkung entspr. I und II; Photoanteil ca. 0,3%.

Kurve IV: entspr. Kurve III, aber mit Berücksichtigung des abstandsabhängigen Anfangstromes bei konst. Fremdbestrahlung der Kathode.

Annahmen: $V_z = 200 \text{ V}$; $d_z = 0,35 \text{ cm}$; $\eta = 2,2 \cdot 10^{-2} \text{ V}^{-1}$; $v_+ = 3,4 \cdot 10^5 \text{ cm/s}$; $v_- = 100 \cdot v_+$; $J_a = 10^{-11} \text{ A}$; $J_e = 10^{-4} \text{ A}$; $J_e/J_a = 10^7 = e\lambda t$; $\lambda = 16/t$.

Fig. 5.

He, gemessen.

$p = 7,5 \text{ Tor}$, $d_z = 0,28 \text{ cm}$.

Kein Photoumschlag.

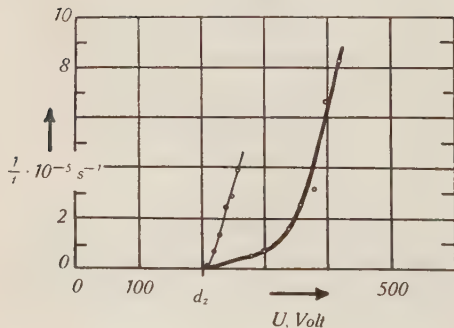
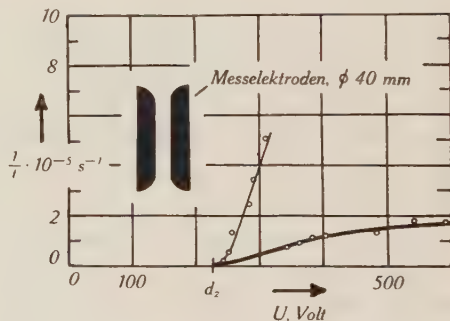


Fig. 6.

$p = 2,59 \text{ Tor}$; $d_z = 0,35 \text{ cm}$.

Anteil des Photoeffektes an der Rückwirkung zwischen 1,6% und 7% im stationären Fall.

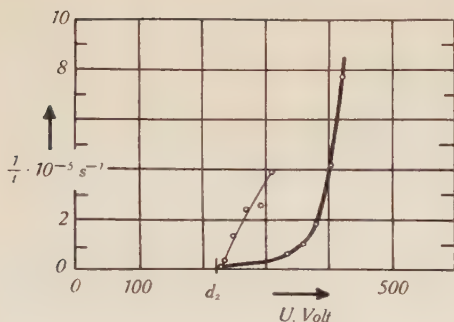


Fig. 7.

Kr, gemessen.

$p = 2,9 \text{ Tor}$, $d_z = 0,35 \text{ cm}$.
 Photoanteil an der Rückwirkung
 im stationären Fall ca. 1,5%–9%.

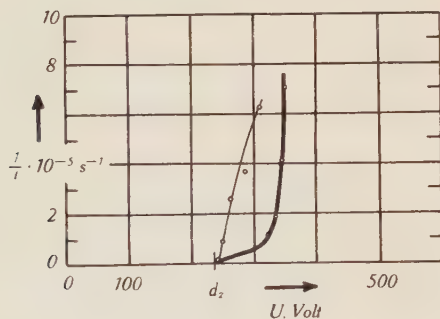


Fig. 8.

Xe, gemessen.

$p = 2,25 \text{ Tor}$, $d_z = 0,35 \text{ cm}$.
 Photoanteil ca. 9%–20%.

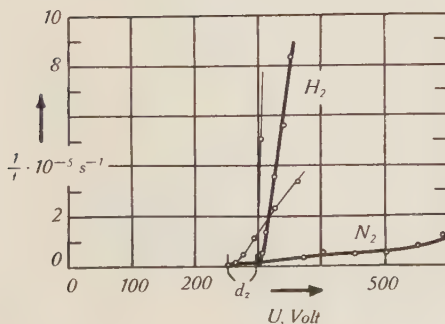


Fig. 9.

 H_2 und N_2 .

N_2 : 1,85 Tor, $d_z = 0,35 \text{ cm}$.

Kein Photoumschlag.

H_2 : 5,1 Tor, $d_z = 0,35 \text{ cm}$.

Photoanteil > 60%.

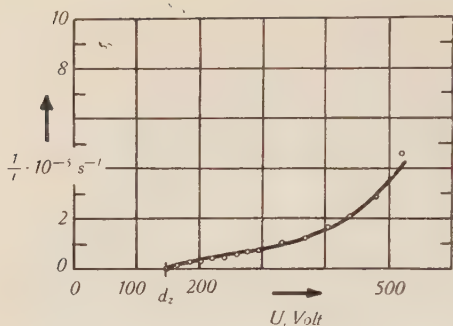


Fig. 10.

Ne- Ar-Gemisch, 99% Ne, 1% Ar.

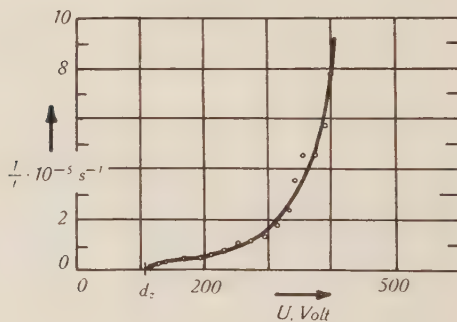
 $p = 7,1 \text{ Tor}$; $d_z = 0,28 \text{ cm}$.Kein eigentlicher Photoumschlag
(Anstieg der Kurve wegen Raum-
wirkungen von M. A. und Licht?)

Fig. 11.

Ar, Bariumkathode.

 $p = 2,4 \text{ Tor}$; $d_z = 0,35 \text{ cm}$.

Photoanteil ca. 0,3%—4%.

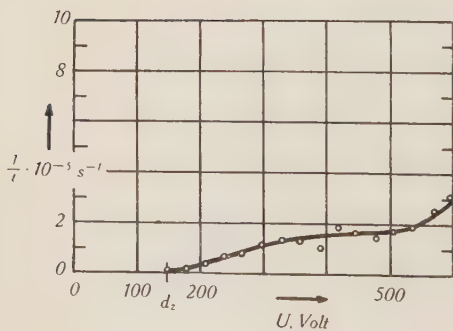


Fig. 12.

He, Bariumkathode.

 $p = 6,35 \text{ Tor}$, $d_z = 0,35 \text{ cm}$.

Kein Photoumschlag.

In Übereinstimmung mit den indirekten Beobachtungen COSTAS²⁷⁾ wurde in H_2 ein sehr grosser Anteil des Photoeffektes am Rückwirkungsprozess festgestellt und die entsprechende Kurve zeigt keine eigentliche, auf $\alpha - \gamma$ -Mechanismus zurückzuführende Stufe. Auf eine Deutung des sehr verschiedenen Verhaltens von H_2 und N_2 sei hier verzichtet und es sei nur auf eine gewisse Analogie zwischen unsern Beobachtungen und denen von FISHER³⁴⁾ hingewiesen.

5. Einfluss der Aufbauzeit auf die Stabilität einer Townsend-Entladung

Kleine Überspannungen. Inhomogene Felder.

Die vorstehenden Betrachtungen lassen beim Anlegen einer Spannung, die die Zündspannung nur wenig übersteigt, abgesehen vom statistischen Zündverzug einen sehr langsamen Aufbau erwarten. Tatsächlich sind, wie schon SCHADE³⁾ gefunden hat, Zeiten von einigen Zehntelsekunden leicht und reproduzierbar zu messen — auch dann, wenn man Wundladungen und sonstige störende Einflüsse ausschaltet. Das ist an sich nicht erstaunlich, da ja gerade in der Nähe der statischen Charakteristik die langsamsten Rückwirkungsprozesse den zeitlichen Verlauf des Entladungsaufbaues im wesentlichen bestimmen.

Diese Aufbauzeiten sind nun neben der Stromspannungscharakteristik für den Spannungsbereich, innerhalb dem ein stromschwacher Zustand stabil ist, von ausschlaggebender Bedeutung. Ihre ungefähre Kenntnis ist daher auch für die Technik wichtig, denn sie bedingen z. B. die für gewisse Steuerzwecke notwendige Leistung und Zeit (Glimmrelais).

Mit der Stromspannungscharakteristik der Townsend-Entladung beschäftigen sich besonders Arbeiten von SCHADE⁴²⁾, BÜTTNER⁴³⁾ und MEILI¹⁸⁾. Die reine Townsendsche Theorie des Durchschlages mit den zugehörigen Erweiterungen über Rückwirkung lässt bei kleinen Strömen einen horizontalen Verlauf erwarten. Berücksichtigung des Einflusses der Entladungsprodukte gibt eine Anfangsneigung, und da die Entladungsprodukte meist stromdichtebegünstigend wirken, beobachtet man im allgemeinen eine fallende Anfangscharakteristik. Das Experiment ergab für homogene Felder bei reinen Gasen in einem weiten Strombereich linearen Abfall. Erst bei grösseren Stromdichten und damit durch Raumladung merklich verzerrtem Feld wird der Abfall viel steiler; es kommt zum sehr rasch verlaufenden Raumladungskippen. Später schliessen sich der Reihe nach das bekannte horizontale Gebiet der normalen Ent-

ladung, der steigende Ast der anormalen Entladung und der Umschlag in den Lichtbogen an.

Wir betrachten nun im folgenden eine Anordnung nach Fig. 13, wobei das Rohr eine linear fallende Anfangscharakteristik aufweisen soll. Die Eigenkapazität sei in C inbegriffen.

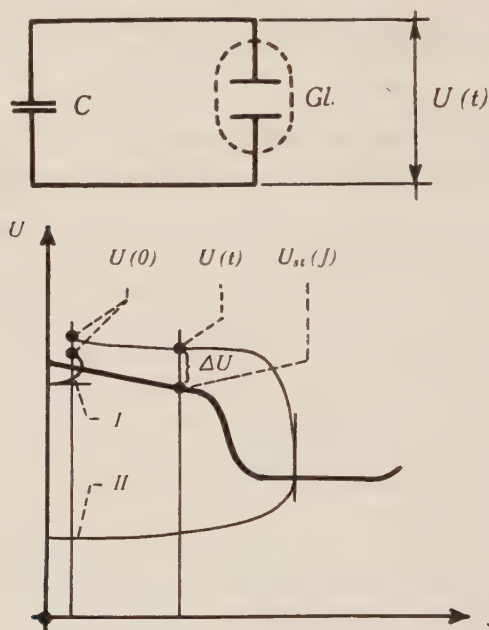


Fig. 13.

Dynamische Charakteristiken.

Kurve I: stabiler Fall. Kurve II: labiler Fall.

Maßstäbe willkürlich angenommen.

Wir bezeichnen die am Rohre liegende Spannung mit $U(t)$, den Ionen- und Elektronenstrom im Rohr mit $J(t)$ und für die statische Stromspannungscharakteristik schreiben wir im Bereich kleiner Ströme

$$U_{st}(J) = U_{st}(0) - c_1 J; \quad c_1 = \frac{dU_{st}}{dJ}. \quad (19)$$

Die Bedeutung von $\Delta U(t)$ ergibt sich aus Fig. 13 als $\Delta U(t) = U(t) - U_{st}(J)$; je nach Vorzeichen haben wir Aufbau oder Abklingen der Entladung.

Nun ist $\frac{dJ}{dt} = f(J, U)$ und für Zustände in der Umgebung der statischen Charakteristik verwenden wir als Näherung

$$\frac{dJ}{dt} = c_2 J c_3 \Delta U. \quad (20)$$

(Während die Annahme einer Proportionalität von dJ/dt mit J und damit mit der schon vorhandenen Trägerzahl naheliegt, ist die Abhängigkeit von der Überspannung erfahrungsgemäss nicht genau linear, der Ansatz aber für kleine Abweichungen von den Spannungen der statischen Charakteristik als erste Näherung gerechtfertigt.)

Wir berechnen nun noch $\Delta U(t)$

$$\Delta U(t) = \Delta U(0) + c_1 \{J(t) - J(0)\} - \frac{1}{C} \int_0^t J dt. \quad (21)$$

Wenn wir das in Gl. 20 einsetzen und differenzieren, finden wir eine Differentialgleichung zwischen $J(t)$ und t . Integration und Diskussion liefern aber ausser einer Kippbedingung, die wir auch direkt erhalten können, nichts Neues.

An unserer Anordnung sei zur Zeit $t = 0$ ein Zustand $\Delta U(0) \geq 0$, $J(0)$ realisiert. Da die Spannung über der Brennschaltung für den entsprechenden Strom liegt, kommt es zunächst zu einem Stromanstieg, wobei die nötige Ladung durch die Kapazität C geliefert werden muss. ΔU wird einerseits durch Entladung von C verkleinert, andererseits aber infolge der mit wachsendem Strom abnehmenden Brennschaltung der Entladung vergrössert. Je nach dem Überwiegen des einen oder anderen Effektes sind zwei Fälle möglich. Entweder tritt schon bald ein Abklingen des Stromes ein, bevor ein grösserer Stromstoss erfolgt ist (Fig. 13, Kurve I) oder aber der Strom wächst so lange an, bis ein flacherer Teil der Stromspannungscharakteristik ein weiteres Anwachsen der Überspannung verunmöglicht, worauf die Entladung nach einem mit beträchtlichem Energieumsatz verbundenen Durchkippen erlischt (Fig. 13, Kurve II). Ob Fall I oder II eintritt, ist durch die Grösse der zu Beginn vorhandenen Überspannung bedingt. Denn von ihr hängt die Zeit des Vorganges und damit die Ladungsmenge ab, die für das Anwachsen des Stromes um einen bestimmten Wert benötigt wird.

Als Kippbedingung fordern wir im Gebiet der Anfangscharakteristik

$$\frac{d\Delta U}{dt} \geq 0. \quad (22)$$

In Verbindung mit Gl. 21 ergibt sich

$$\frac{d\Delta U}{dt} = c_1 \frac{dJ}{dt} - \frac{J}{C} \quad (23)$$

und unter Verwendung von Gl. 20 findet man nach kurzer Umrechnung die Kippbedingung

$$\Delta U_k \geq \frac{1}{c_1 c_2 c_3} \cdot \frac{1}{C}. \quad (24)$$

Gl. 24 gibt bei gegebenen Eigenschaften der Entladungsstrecke jene Überspannung, die mindestens vorhanden sein muss, um ein Durchzünden zu gewährleisten. Wie aus der Definition der Konstanten c_1 , c_2 und c_3 hervorgeht, ist diese Überspannung umso kleiner, je stärker die Anfangscharakteristik der Entladung geneigt ist und je kürzer die Aufbauzeit ist. Erwartungsgemäss sinkt sie auch mit wachsender Kapazität.

Bei der *Steuerung einer Relaisglimmstrecke* mit sehr kleiner Leistung ist es ebenfalls notwendig, dass das Steuerorgan imstande ist, die Kippüberspannung zu erzeugen, worauf die beim Durchzünden entstandenen Entladungsprodukte z. B. zur Einleitung der Entladung in einer Nachweisstrecke verwendet werden können. (Falls die Kippüberspannung nicht erreicht wird, erfolgt nur stabiles Brennen der Steuerstrecke mit dem verfügbaren Steuerstrom oder es treten kleine Kippschwingungen im Townsendgebiet auf, und der relativ geringe, auf lange Zeiten verteilte Leistungsumsatz ist für technische Zwecke ungeeignet.)

Man erkennt nun auch, dass die Mindestleistung, die notwendig ist, um nach Erreichen der Zündspannung die Entladung auch noch zum Durchkippen zu bringen, unabhängig von der Kapazität durch den Faktor $\frac{1}{c_1 c_2 c_3}$ gegeben ist und also nur von Aufbauzeit und Anfangsneigung abhängt. Wenn — wie bei unserer bisherigen Betrachtung — das Steuerorgan während des Entladungsaufbaues keine weitere Leistung abgibt, ist auch die notwendige Kippüberspannung bei gegebener Anordnung vom anfänglichen Entladungsstrom unabhängig.

Für ein Steuerorgan mit Sättigungscharakter, das einen konstanten Steuerstrom J_{st} zu liefern imstande wäre (z. B. Photozelle oder Ionisationskammer) ergäbe eine analoge Rechnung die Kippbedingung

$$\Delta U_k \geq \frac{1}{c_1 c_2 c_3} \frac{1}{C} \left(1 - \frac{J_{st}}{J}\right). \quad (25)$$

Bei Ohmschem Widerstand des Steuerorganes tritt Kippen natürlich immer ein, wenn die Stromspannungscharakteristik des Steuerorganes flacher verläuft, als die der Entladungsstrecke (KAUFMANNsche Bedingung). Andernfalls ist stabiles Brennen bei sehr kleinen Strömen möglich.

In jedem einzelnen Falle ist zu prüfen, ob der angewandte Steuerimpuls oder im Entladungsmechanismus begründete statistische Effekte die notwendige Kippüberspannung erwarten lassen oder ob nur kleine Kipperschwingungen und stabiles Brennen im Townsend-Gebiet auftreten.

Wir können in der Kippbedingung (Gl. 24) noch statt der Überspannung ΔU den für Kippen notwendigen Mindestwert der reziproken Zeitkonstanten λ einführen und finden nun als Kippbedingung

$$\lambda_k \geq \frac{1}{c_1} \cdot \frac{1}{C}; \quad c_1 = \frac{dU_{st}}{dJ}. \quad (26)$$

Bei homogenen Feldern kann mit exponentiellem Stromanstieg gerechnet und $\lambda(\Delta U)$ den Messungen Fig. 14–21 ungefähr entnommen werden. Zusammen mit den vorliegenden experimentellen Unterlagen über die Anfangscharakteristik der Townsend-Entladung^(15) 42) 43)) kann Gl. 26 Anhaltspunkte über die ungefähre Grösse der zum Durchkippen notwendigen Überspannung in manchen Fällen geben.

Zahlbeispiel: Wir gehen aus von den Aufbauzeiten für Argon (Fig. 15). Nach den oben zitierten Arbeiten von MEILI und BÜTTNER würde $\frac{dU_{st}}{dJ}$ etwa $4 \cdot 10^6$ V/A für das kleine, etwa $1,5 \cdot 10^6$ V/A für das mittlere und etwa $5 \cdot 10^5$ V/A für das grosse Rohr betragen. Da der Anfangsstrom der Aufbauzeitmessung etwa 10^{-11} A, der Endstrom etwa 10^{-4} A beträgt, wäre $e^{\lambda t} = Je/J_A = 10^7$ und λ also etwa $16/t$. Wenn wir mit einer Kapazität C von 10 pf (10^{-11} F) rechnen, lautet die Kippbedingung

$$\text{für das kleine Rohr } \lambda = \frac{16}{t} \geq \frac{1}{4 \cdot 10^6 \cdot 10^{-11}} \text{ s}^{-1}; \quad t \leq 6,4 \cdot 10^{-4} \text{ s}$$

$$\text{für das mittlere Rohr } \lambda \geq \frac{1}{1,5 \cdot 10^6 \cdot 10^{-11}} \text{ s}^{-1}; \quad t \leq 2,4 \cdot 10^{-4} \text{ s}$$

$$\text{für das grosse Rohr } \lambda \geq \frac{1}{5 \cdot 10^5 \cdot 10^{-11}} \text{ s}^{-1}; \quad t \leq 9 \cdot 10^{-5} \text{ s}.$$

Aus Fig. 15 ergibt sich, dass dafür eine Überspannung von etwa 2 V beim kleinen, von etwa 6,5 V beim mittleren und von etwa 30 V*) beim grossen Rohr benötigt wird. Bei Vergrösserung der Parallelkapazität auf 100 pf wären etwa 0,5 V statt 2 V beim kleinen Rohr, etwa 1,5 statt 6,5 V beim mittleren Rohr und etwa 6 V beim grossen Rohr notwendig.

*) Die Anwendbarkeit unserer Näherung wird hier schon sehr fraglich.

Für Krypton und Xenon wären ähnliche Überspannungen wie für Argon zu erwarten. Dagegen würden sie im analogen Fall für Helium mit seinen in Umgebung der statischen Charakteristik sehr langen Aufbauzeiten und bei der wahrscheinlich flacher verlaufenden Anfangscharakteristik wesentlich grösser. Wasserstoff dagegen liesse infolge seiner kurzen Aufbauzeiten trotz der noch weniger steilen Anfangscharakteristik bedeutend kleinere Kippüberspannungen erwarten.

Die Messungen sollten einige Anhaltspunkte über die zu erwartende Grössenordnung der Aufbauzeit und über den Gültigkeitsbereich der zeitlichen Ähnlichkeitsgesetze für verschiedene Gase und bei kleinen Überspannungen geben. Sie wurden an den in Abschnitt 2b) beschriebenen drei ähnlichen Rohren mit homogenem Feld sowie an der Strecke mit Anodenspitze durchgeführt. Der Gasdruck wurde jeweils so gewählt, dass pd merklich über dem Minimumabstand lag. Die Messungen beziehen sich in allen Fällen auf einen Anfangsstrom von etwa $1 \cdot 10^{-11}$ A und einen Endstrom von $1 \cdot 10^{-4}$ A. Einige Messungen über den Zusammenhang von Aufbauzeit und Anfangsstrom ergaben die zu erwartende logarithmische Abhängigkeit, die schon SCHADE³⁾ gefunden hatte. Das auf Grund der Ähnlichkeitsgesetze zu erwartende Verhalten (Proportionalität von Zeiten und Lineardimensionen der Strecke) wurde für nicht zu kleine Überspannungen trotz der ähnlichkeitsstörenden Einflüsse, die sich z. B. bei der Anfangscharakteristik stark bemerkbar machen, zumindest qualitativ bestätigt gefunden.

Um kurze Aufbauzeiten und steile Anfangscharakteristiken zu erhalten, sind kleine Entladungsstrecken und hohe Gasdrucke anzustreben (damit endlich bei erreichter Instabilität im Verlaufe der Zündung ein genügender Energieumsatz stattfindet, muss auch für hinreichende Differenz zwischen Zünd- und Brennspannung gesorgt sein). Weiterführung dieser Überlegung lässt Anordnung einer Elektrode als Spitze, kleinen Elektrodenabstand und hohen Gasdruck als günstig erscheinen. Unter solchen Bedingungen tritt auch das Raumladungskippen bei wesentlich geringeren Strömen ein, als im homogenen Feld*). Bei einer Anodenspitze z. B. bleiben während des Aufbaues die verhältnismässig trägen Ionen lange in der Nähe der Anode und haben auf das Feld eine ähnliche Wirkung, wie wenn die Anode vergrössert worden wäre. Die Verhältnisse sind damit im allgemeinen für die Ionisierung günstiger, was auf die statische Brennspannung erniedrigend (steile Charakteristik) und

*) Über Ionisierung im inhomogenen Feld und Anwendbarkeit der Formel $i = i_0 e^{\int \alpha dx}$ vgl. MORTON⁴⁴⁾ 45).

Fig. 14–21.

Aufbauzeiten für kleine Überspannungen

In den Figuren ist die Zeit (t), die für einen Stromanstieg von 10^{-11} A bis 10^{-4} A benötigt wird, als Funktion der Überspannung (ΔU) aufgetragen. Die Messungen beziehen sich auf drei ähnliche Rohre (vgl. S. 313) und auf inhomogene Felder.

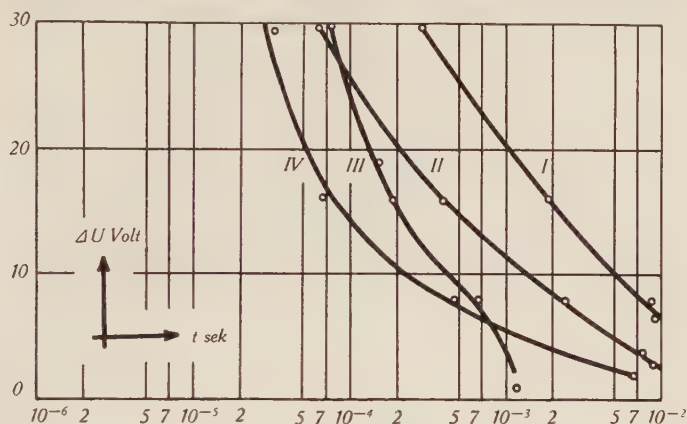


Fig. 14.

Helium.

- | | | |
|------|---------------------------------|----------|
| I: | homogenes Feld, grosses Rohr, | 3,0 Tor |
| II: | homogenes Feld, mittleres Rohr, | 7,5 Tor |
| III: | homogenes Feld, kleines Rohr, | 19,0 Tor |
| IV: | Anodenspitze, | 19,0 Tor |

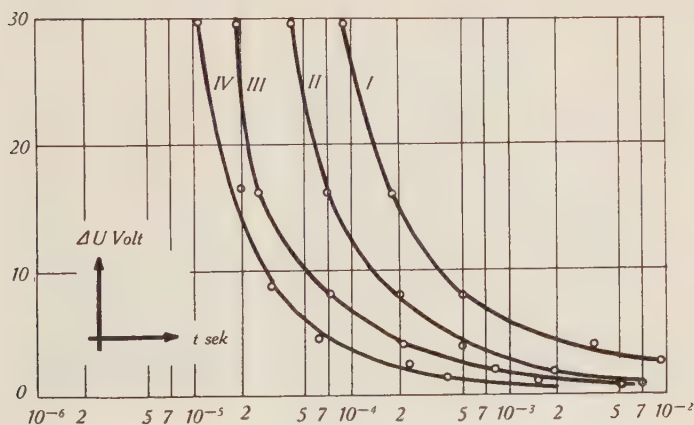


Fig. 15.

Argon.

- | | | |
|------|---------------------------------|----------|
| I: | homogenes Feld, grosses Rohr, | 2,35 Tor |
| II: | homogenes Feld, mittleres Rohr, | 5,6 Tor |
| III: | homogenes Feld, kleines Rohr, | 14 Tor |
| IV: | Anodenspitze, | 14 Tor |

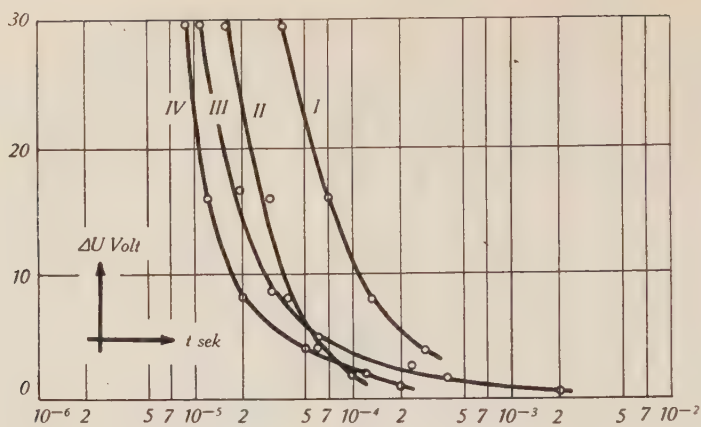


Fig. 16.

Argon.

Anodenspitze I: 3,7 Tor
 II: 7,5 Tor
 III: 15,0 Tor
 IV: 30,0 Tor

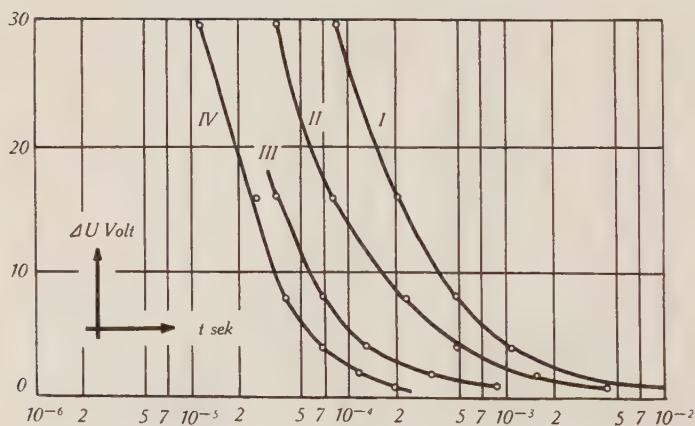


Fig. 17.

Krypton.

I: homogenes Feld, grosses Rohr, 1,85 Tor
 II: homogenes Feld, mittleres Rohr, 4,7 Tor
 III: homogenes Feld, kleines Rohr, 11,5 Tor
 IV: Anodenspitze, 11,5 Tor

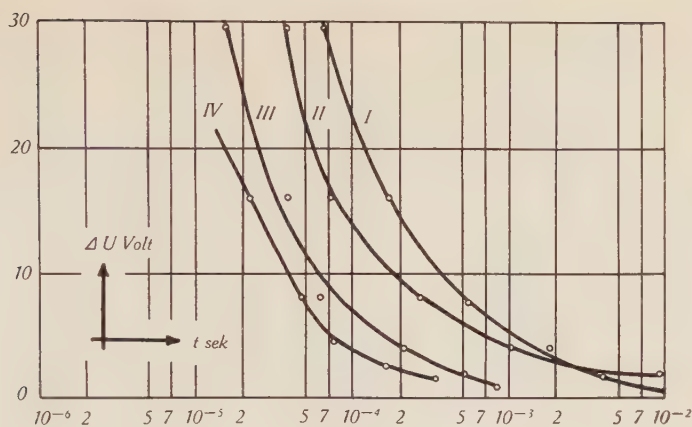


Fig. 18.

Xenon.

- I: homogenes Feld, grosses Rohr, 1,1 Tor
 II: homogenes Feld, mittleres Rohr, 2,8 Tor
 III: homogenes Feld, kleines Rohr, 7,0 Tor
 IV: Anodenspitze, 7,0 Tor

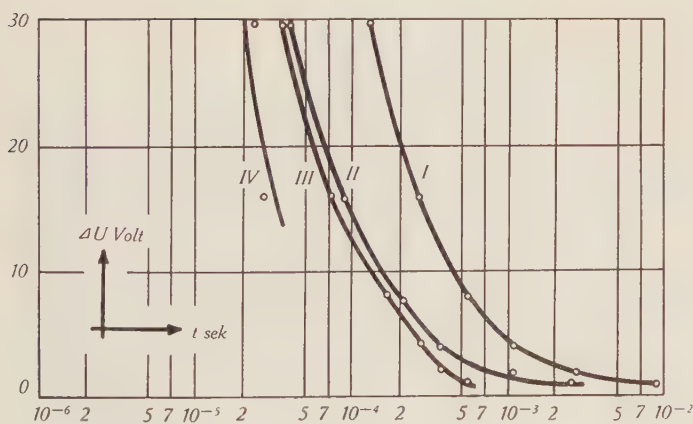


Fig. 19.

Ne- Ar-Gemisch, 99% Ne, 1% Ar.

- I: homogenes Feld, grosses Rohr, 3,7 Tor
 II: homogenes Feld, mittleres Rohr, 11,0 Tor
 III: homogenes Feld, kleines Rohr, 28,0 Tor
 IV: Anodenspitze, 28,0 Tor

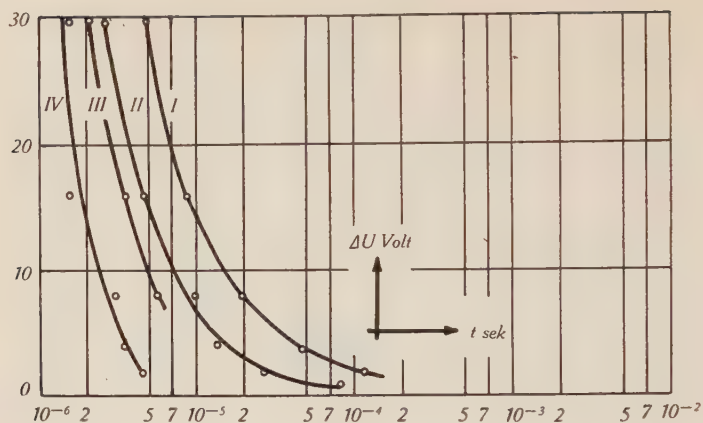


Fig. 20.

 H_2 .

- I: homogenes Feld, grosses Rohr, 2,25 Tor
 II: homogenes Feld, mittleres Rohr, 5,5 Tor
 III: homogenes Feld, kleines Rohr, 14,0 Tor
 IV: Anodenspitze, 18,0 Tor

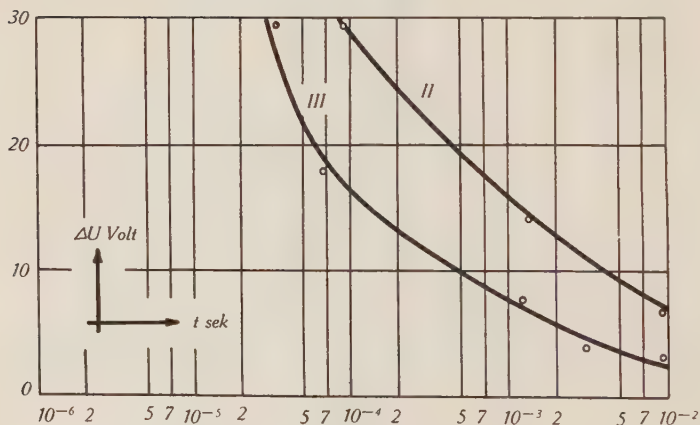


Fig. 21.

 N_2 .

- II: homogenes Feld, mittleres Rohr, 4,6 Tor
 III: homogenes Feld, kleines Rohr, 11,5 Tor

auf den Aufbau beschleunigend wirkt. Alle diese Effekte begünstigen eine Steuerung der Strecke mit kleinen Strömen oder kurzen Impulsen*). Fig. 16 gibt einige Messergebnisse für Anodenspitze in Argon wieder (Druckabhängigkeit).

Um das Verhalten der einzelnen Gase zu verstehen, muss man bedenken, dass nicht nur die Ionenmasse, sondern auch die Ionisierungszahl α und der Anteil M. A. auf die Geschwindigkeit des Stromanstieges massgebenden Einfluss ausüben. Die verhältnismässig steile Anfangscharakteristik und der geringe Anteil der Metastabilen an der Rückwirkung kann die relativ kurzen Aufbauzeiten bei schweren Edelgasen mit ihren hohen Ionisierungszahlen sowie die im Vergleich mit Edelgasen kurzen Aufbauzeiten in H_2 erklären.

Meinem verehrten Lehrer, Herrn Prof. Dr. P. SCHERRER, der die Durchführung dieser Arbeit am Physikalischen Institut der ETH. ermöglicht hat, möchte ich für sein stetes wohlwollendes Interesse und für viele wertvolle Anregungen von Herzen danken.

Weiter gilt mein Dank Herrn Dr. E. MEILI von der Cerberus G. m. b. H. in Bad Ragaz, der die Durchführung von Versuchen über die Stabilität von Townsend-Entladungen angeregt und die Arbeit durch viele wichtige Hinweise sowie durch Überlassung von Material unterstützt hat.

Literatur.

- 1) W. BARTHOLOMEYCZYK, Zs. f. Phys. **116**, 235 (1940).
- 2) W. ROGOWSKI, Zs. f. Phys. **114**, 1 (1939).
- 3) R. SCHADE, Zs. f. Phys. **104**, 487 (1937).
- 4) H. RAETHER, Zs. f. Phys. **117**, 375 (1941); **117**, 524 (1941).
- 5) L. B. LOEB und J. M. MEEK, The mechanism of the electric spark, Stanf. Un. Press (1941).
- 6) W. ROGOWSKI und A. WALRAFF, Zs. f. Phys. **106**, 212 (1937).
- 7) W. BARTHOLOMEYCZYK, G. MIERDEL, R. SEELIGER, Phys. in reg. Ber. **2**, 67 (1934); **6**, 79 (1938); **10**, 69 (1942).
- 8) M. J. DRUYVESTEYN und F. M. PENNING, Rev. mod. Phys. **12**, 87, 1940.
- 9) R. WINSTANLEY, A. v. ENGEL, J. M. MEEK, Rep. on progr. in phys. **3**, 338 (1941).
- 10) V. J. FRANCIS und H. G. JENKINS, Rep. on progr. in phys. **7**, 230 (1940).
- 11) J. DOSSE und G. MIERDEL, Der elektrische Strom im Hochvakuum und in Gasen, Leipzig 1943.
- 12) L. B. LOEB, Fundamental processes of electrical discharges in gases, New York 1939.
- 13) W. ROGOWSKI, Zs. f. Phys. **115**, 257 (1940).

*) Laut persönlichen Mitteilungen hat MEILI schon früher derartige Strecken in technischen Glimmrelais mit Vorteil verwendet.

- 14) J. CZECK, Zs. f. angew. Photogr. **3**, 65 (1941).
- 15) M. STEENBECK, Wiss. Veröff. a. d. Siemens Werken, **9**, 43 (1930).
- 16) W. DRUEY, Helv. Phys. Acta **9**, 707 (1936); **10**, 3 (1937).
- 17) C. STOERK, Elektrot. Zs. **52**, 43 (1931).
- 18) E. MEILI, Helv. Phys. Acta, **18**, 80 (1945).
- 19) F. TANK und K. GRAF, Helv. Phys. Acta **2**, 33 (1929).
- 20) L. B. LOEB, Rev. mod. phys. **8**, 267 (1936).
- 21) L. B. LOEB, Fundamental proc. of el. disch. in gases, S. 76, Fig. 37, Kurven II/III, 1939.
- 22) A. V. HERSHEY, Phys. Rev. **56**, 916 (1939).
- 23) L. B. LOEB, A. F. KIP, G. G. HUDSON, W. H. BENNET, Phys. Rev. **60**, 714 (1941).
- 24) W. CHRISTOPH, Ann. de Phys. **30**, 446 (1937).
- 25) H. GREINER, Zs. f. Phys. **81**, 543 (1933).
- 26) W. SCHWIECKER, Zs. f. Phys., **116**, 562, 1940.
- 27) H. COSTA, Zs. f. Phys. **116**, 508 (1940); **113**, 531 (1939).
- 28) A. M. CRAVATH, Phys. Rev. **47**, 254 (1935).
- 29) G. DECHÈNE, Journ. de Phys. et Radium **7**, 533 (1936).
- 30) W. FUCKS und F. KETTEL, Zs. f. Phys. **116**, 657 (1940).
- 31) R. SCHADE, Zs. f. Phys. **111**, 437 (1939).
- 32) R. SCHÖFER, Zs. f. Phys. **110**, 21 (1938).
- 33) R. GEBALLE, Phys. Rev. **66**, 316 (1944).
- 34) L. H. FISHER, Phys. Rev. **68**, 279 (1945).
- 35) G. L. WEISSLER, Phys. Rev. **63**, 96 (1943).
- 36) W. L. GRANOWSKI, Bull. Acad. Sci. (russ.) sér. phys., S. 419 1938*).
- 37) H. PAETOW, Zs. f. Phys. **111**, 770 (1939).
- 38) A. HOFFMANN, Zs. f. Phys. **119**, 223 (1942).
- 39) W. FUCKS und H. BONGARTZ, Zs. f. techn. Phys. **20**, 205 (1939).
- 40) H. BETHE, Handbuch d. Phys., 2. Aufl. **24/1**, S. 452.
- 41) W. UYTERHOEVEN, Elektr. Gasentladungslampen, Berlin 1938.
- 42) R. SCHADE, Zs. f. Phys. **105**, 595 (1937).
- 43) H. BÜTTNER, Zs. f. Phys. **111**, 750 (1939).
- 44) P. L. MORTON, Phys. Rev. **70**, 358 (1946).
- 45) G. W. JOHNSON, Phys. Rev. **71**, 278 (A), (1947).
- 46) F. ALDER, E. BALDINGER, P. HUBER, F. METZGER, Helv. Phys. Acta, **20**, 73 (1947).
- 47) L. B. LOEB, Phys. Rev. **71**, 712 (A), (1947).

*) Diese Arbeit konnte nicht im Original eingesehen werden (vgl. Phys. Ber. **22**, 1653 (1941)).

Die Ausbreitung der gedämpften $H_{0,m}$ -Welle in der Umgebung der Grenzfrequenz

von A. Käch.

(Brown, Boveri & Cie., Baden, Schweiz.)

(3. IV. 1947)

Die Fortpflanzung elektromagnetischer Wellen im metallischen Hohlleiter ist in der Literatur schon umfassend beschrieben worden. Die Angaben sind jedoch lückenhaft, sobald die Rohrleitungsverluste in die Rechnung einbezogen werden. In diesem Fall wird das Verhalten lediglich unterhalb und oberhalb der Grenzfrequenz erklärt, während die Aussagen über die Wellenausbreitung im unmittelbaren Grenzgebiet durchwegs empirischen Charakter haben*).

Inhalt.

Es erfolgt die ausführliche Berechnung von Ausbreitung und Dämpfung der $H_{0,m}$ -Welle (elektrisches Querfeld, magnetisches Längsfeld) im rechteckigen Wellenleiter mit besonderer Berücksichtigung der Leitungsverluste. Die Rechnung wird in engster Anlehnung an die Verhältnisse des idealen Wellenleiters (unendliche Leitfähigkeit) im Sinne einer Störungsrechnung erster Ordnung durchgeführt. Die hervorgehenden Ausdrücke sind allgemein und gelten durchgehend im gesamten interessierenden Frequenzgebiet; insbesondere ergibt sich eine Formel für die Dämpfung bei der Grenzfrequenz des Wellenleiters. Unterhalb und oberhalb der Grenzfrequenz sind die erhaltenen Ausdrücke identisch mit den in der Literatur angegebenen.

Einleitung.

Die Energieverluste im Metall des Wellenleiters verformen die im Idealfall vorhandene Planwelle zu einer schwach ausgeprägten Kugelwelle. Eine exakte Berechnung der Feldverteilung (Lösung nach Eigenfunktionen) ist deshalb nicht mehr möglich. Infolge der grossen Leitfähigkeit des Wellenleiters und der hohen Frequenz der Rohrwelle (kleine Eindringtiefe) lässt sich jedoch eine sehr genaue Näherung herleiten. Namentlich bewirkt die ausserordent-

*) Vgl. Abschnitt 9. 14 in S. Ramo and J. R. Whinnery, Fields and Waves in Modern Radio, New York 1945, S. 373.

lich kleine Eindringtiefe eine praktisch vollständige Entkettung der eindringenden Feldkomponenten. Ferner ist die Feldverzerrung so klein, dass sie in erster Näherung als linear betrachtet werden kann.

Bei der $H_{0,m}$ -Welle haben die durch die Leitungsverluste verursachten Störkomponenten vorwiegend die Eigenschaften einer kleinen Welle des E -Typus. Wir berücksichtigen diese zusätzlichen Felder derart, indem wir der H -Welle formal noch eine E -Welle überlagern. Die Verknüpfung der beiden ist am Rande des Wellenleiters durch den Zusammenhang der Störkomponenten im Metallinnern gegeben.

1. Die Feldkomponenten.

Die Herleitung erfolgt, soweit sie mit den üblichen Literaturangaben übereinstimmt, in kurzgefasster Form.

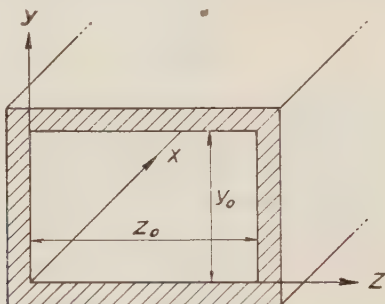


Fig. 1.

Definierende Koordinaten im Leiterhohlraum.

Für die Wellenausbreitung gelten die MAXWELLSchen Gleichungen in der allgemeinen Fassung

$$\left. \begin{aligned} \operatorname{rot} H &= \sigma E + \varepsilon \frac{\partial E}{\partial t} \\ \operatorname{rot} E &= -\mu \frac{\partial H}{\partial t} \\ \operatorname{div} H &= 0 \\ \operatorname{div} E &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

Die Feldstruktur (Planwelle) gestattet in der x -Richtung bei gleichzeitigem Übergang zum stationären Zustand den allgemeinen Ansatz

$$H = \mathfrak{H} e^{j\omega t - \gamma x}; \quad E = \mathfrak{E} e^{j\omega t - \gamma x}. \quad (2)$$

Mit Bezug auf die in Fig. 1 definierten Koordinaten gelten mithin für die Feldkomponenten der Rohrwelle die sechs Differentialgleichungen.

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial \mathfrak{H}_z}{\partial y} - \frac{\partial \mathfrak{H}_y}{\partial z} &= (\sigma + j\omega\varepsilon) \mathfrak{E}_x \\ \frac{\partial \mathfrak{H}_x}{\partial z} + \gamma \mathfrak{H}_z &= (\sigma + j\omega\varepsilon) \mathfrak{E}_y \\ -\gamma \mathfrak{H}_y - \frac{\partial \mathfrak{H}_y}{\partial y} &= (\sigma + j\omega\varepsilon) \mathfrak{E}_z \end{aligned} \right\} \quad (3) \quad \left. \begin{aligned} \frac{\partial \mathfrak{E}_z}{\partial y} - \frac{\partial \mathfrak{E}_y}{\partial z} &= -j\omega\mu \mathfrak{H}_x \\ \frac{\partial \mathfrak{E}_x}{\partial z} + \gamma \mathfrak{E}_z &= -j\omega\mu \mathfrak{H}_y \\ \gamma \mathfrak{E}_y + \frac{\partial \mathfrak{E}_x}{\partial y} &= j\omega\mu \mathfrak{H}_z \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

Hierin bedeuten allgemein $\varepsilon = \varepsilon_o \varepsilon_r$ die Dielektrizitätskonstante und $\mu = \mu_o \mu_r$ die Permeabilität, wobei $\varepsilon_o = (1/36\pi) 10^{-11}$ F/cm und $\mu_o = 4\pi \cdot 10^{-9}$ H/cm, ferner σ die Leitfähigkeit in S/cm, ω die Kreisfrequenz und γ die Fortpflanzungskonstante.

Die Auflösung dieses Gleichungssystems führt beim idealen Wellenleiter bekanntlich auf die Komponenten zweier simultaner Wellentypen, die H -Welle, charakterisiert durch $\mathfrak{E}_x = 0$ und die E -Welle, charakterisiert durch $\mathfrak{H}_x = 0$. Bei endlicher Leitfähigkeit entstehen durch die ins Leitermetall eindringenden Felder zusätzlich noch weitere Komponenten, die bei der H -Welle vorwiegend die Eigenschaften einer kleinen E -Welle aufweisen, insbesondere ist $\mathfrak{E}_x \neq 0$ (vgl. Abschnitt 2). Hierin liegt die Möglichkeit zur Erfassung der Leitungsdämpfung, wozu wir zunächst rein formal der H -Welle noch eine E -Welle überlagern. In der Rechnung nehmen wir der Einfachheit halber das Dielektrikum im Leiterhohlraum als verlustfrei (Luft) an. Im Falle eines verlustbehafteten Dielektrikums erhalten wir dann die Ausbreitungskonstante unmittelbar aus der ursprünglichen, indem wir dort an Stelle von $j\omega\varepsilon$ einfach den Wert $j\omega\varepsilon + \sigma = j\omega\varepsilon(1 - j \operatorname{tg} \delta)$ setzen (δ = Verlustwinkel).

Zur Ermittlung der Feldkomponenten bestimmen wir zunächst die Funktionen von \mathfrak{H}_x und \mathfrak{E}_x im Leiterhohlraum. Sie haben den beiden unabhängigen Differentialgleichungen

$$\frac{\partial^2 \mathfrak{H}_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \mathfrak{H}_x}{\partial z^2} = -(\gamma^2 + \omega^2 \mu \varepsilon) \mathfrak{H}_x \quad (5)$$

und

$$\frac{\partial^2 \mathfrak{E}_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \mathfrak{E}_x}{\partial z^2} = -(\gamma^2 + \omega^2 \mu \varepsilon) \mathfrak{E}_x \quad (6)$$

zu genügen, wie unmittelbar aus (3) und (4) nach Eliminierung der übrigen Unbekannten hervorgeht.

Die Lösung von (5) findet sich mit Hilfe des Produktansatzes

$$\mathfrak{H}_x = \bar{H} p(y) \cdot q(z),$$

worin $p(y)$ nur eine Funktion von y und $q(z)$ nur eine Funktion von z bedeutet. Dieser Forderung genügen die Eigenfunktionen

$$\begin{aligned} p(y) &= a_1 \sin(A_1 y) + \cos(A_1 y) \\ q(z) &= a_2 \sin(A_2 z) + \cos(A_2 z); \end{aligned}$$

mithin ist die Lösung von der Art

$$\mathfrak{S}_x = \overline{H} \{a_1 \sin(A_1 y) + \cos(A_1 y)\} \{a_2 \sin(A_2 z) + \cos(A_2 z)\}, \quad (7)$$

worin a_1 , a_2 und A_1 , A_2 noch näher zu bestimmende Konstanten bedeuten.

In analoger Weise ergibt sich die Lösung von (6). Wir schreiben sie in der allgemeinen Form

$$\mathfrak{E}_x = \overline{E} \{b_1 \cos(B_1 y) - \sin(B_1 y)\} \{b_2 \cos(B_2 z) - \sin(B_2 z)\} \quad (8)$$

mit den noch unbestimmten Konstanten b_1 , b_2 und B_1 , B_2 . Unbekannt ist ebenfalls die Feldstärke \overline{E} ; sie wird sich später wie alle andern Konstanten aus den Randbedingungen ergeben. Vorläufig besteht einzig der Zusammenhang

$$A_1^2 + A_2^2 = B_1^2 + B_2^2 = \gamma^2 + \omega^2 \mu \varepsilon, \quad (9)$$

wie sich durch Einsetzen von (7) in (5) und (8) in (6) unschwer nachprüfen lässt.

Damit können wir auch die übrigen Komponenten angeben. Sie finden sich unmittelbar aus den Verknüpfungsgleichungen (3) und (4) zu

$$\left. \begin{aligned} \mathfrak{S}_y &= -\frac{1}{k^2} \left\{ \gamma \frac{\partial \mathfrak{S}_x}{\partial y} - j \omega \varepsilon \frac{\partial \mathfrak{E}_x}{\partial z} \right\} \\ \mathfrak{E}_y &= -\frac{1}{k^2} \left\{ \gamma \frac{\partial \mathfrak{E}_x}{\partial y} + j \omega \mu \frac{\partial \mathfrak{S}_x}{\partial z} \right\} \\ \mathfrak{S}_z &= -\frac{1}{k^2} \left\{ \gamma \frac{\partial \mathfrak{S}_x}{\partial z} + j \omega \varepsilon \frac{\partial \mathfrak{E}_x}{\partial y} \right\} \\ \mathfrak{E}_z &= -\frac{1}{k^2} \left\{ \gamma \frac{\partial \mathfrak{E}_x}{\partial z} - j \omega \mu \frac{\partial \mathfrak{S}_x}{\partial y} \right\}, \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

wobei

$$k^2 = \gamma^2 + \omega^2 \mu \varepsilon.$$

Setzt man weiter (7) und (8) ein, so erhält man etwas umständliche Ausdrücke von der Form (z. B. aus der ersten Gleichung von (10))

$$\begin{aligned} \mathfrak{S}_y &= -\frac{\gamma}{k^2} \overline{H} A_1 \{a_1 \cos(A_1 y) - \sin(A_1 y)\} \{a_2 \sin(A_2 z) + \cos(A_2 z)\} - \\ &- \frac{j \omega \varepsilon}{k^2} \overline{E} B_2 \{b_1 \cos(B_1 y) - \sin(B_1 y)\} \{b_2 \sin(B_2 z) + \cos(B_2 z)\}. \end{aligned} \quad (11)$$

Sie lassen sich aber sofort vereinfachen, indem wir schon hier eine Bedingung einführen, deren Notwendigkeit erst später aus der Rechnung hervorgeht. Es wird sich nämlich zeigen (Gl. (35) u. (36)), dass die Verknüpfung mit den speziellen Randbedingungen der $H_{0,m}$ -Welle nur dann eindeutig ist, wenn die beiden Summanden (Gleichung (11)) sowohl nach y wie nach z identische Funktionen enthalten.

Es muss also sein (aus (11)):

$$\text{und} \quad \begin{aligned} a_1 \cos(A_1 y) - \sin(A_1 y) &\equiv b_1 \cos(B_1 y) - \sin(B_1 y) \\ a_2 \sin(A_2 z) + \cos(A_2 z) &\equiv b_2 \sin(B_2 z) + \cos(B_2 z). \end{aligned}$$

Wir erhalten somit unter den Konstanten die für alle vier Ausdrücke von (10) gleich ausfallenden Bedingungsgleichungen

$$\text{und} \quad \left. \begin{aligned} B_1 &= A_1, & B_2 &= A_2 \\ b_1 &= a_1, & b_2 &= a_2. \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

Die Einführung von (12) in (8) ergibt nunmehr für die Komponenten im Leiterhohlraum zusammenfassend die folgende Darstellung:

$$\left. \begin{aligned} \mathfrak{H}_x &= \bar{H} \{a_1 \sin(A_1 y) + \cos(A_1 y)\} \{a_2 \sin(A_2 z) + \cos(A_2 z)\} \\ \mathfrak{E}_x &= \bar{E} \{a_1 \cos(A_1 y) - \sin(A_1 y)\} \{a_2 \cos(A_2 z) - \sin(A_2 z)\} \\ \mathfrak{H}_y &= -\frac{\gamma A_1 \bar{H} + j\omega \varepsilon A_2 \bar{E}}{\gamma^2 + \omega^2 \mu \varepsilon} \{a_1 \cos(A_1 y) - \sin(A_1 y)\} \{a_2 \sin(A_2 z) + \cos(A_2 z)\} \\ \mathfrak{E}_y &= \frac{\gamma A_1 \bar{E} - j\omega \mu A_2 \bar{H}}{\gamma^2 + \omega^2 \mu \varepsilon} \{a_1 \sin(A_1 y) + \cos(A_1 y)\} \{a_2 \cos(A_2 z) - \sin(A_2 z)\} \\ \mathfrak{H}_z &= -\frac{\gamma A_2 \bar{H} - j\omega \varepsilon A_1 \bar{E}}{\gamma^2 + \omega^2 \mu \varepsilon} \{a_1 \sin(A_1 y) + \cos(A_1 y)\} \{a_2 \cos(A_2 z) - \sin(A_2 z)\} \\ \mathfrak{E}_z &= \frac{\gamma A_2 \bar{E} + j\omega \mu A_1 \bar{H}}{\gamma^2 + \omega^2 \mu \varepsilon} \{a_1 \cos(A_1 y) - \sin(A_1 y)\} \{a_2 \sin(A_2 z) + \cos(A_2 z)\}. \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

Die hierin vorkommenden Konstanten müssen nun durch Einfügen der Randbedingungen derart bestimmt werden, dass die Formeln im Falle unendlicher Leitfähigkeit übergehen in die bekannten Ausdrücke der $H_{0,m}$ -Welle des idealen Wellenleiters zu

$$\left. \begin{aligned} \mathfrak{H}_x &= \bar{H} \cos\left(\frac{m\pi}{z_0} z\right) \\ \mathfrak{E}_y &= \frac{j\omega \mu \bar{H}}{\gamma^2 + \omega^2 \mu \varepsilon} \frac{m\pi}{z_0} \sin\left(\frac{m\pi}{z_0} z\right) \\ \mathfrak{H}_z &= \frac{\gamma \bar{H}}{\gamma^2 + \omega^2 \mu \varepsilon} \frac{m\pi}{z_0} \sin\left(\frac{m\pi}{z_0} z\right) \\ \mathfrak{E}_x &= \mathfrak{H}_y = \mathfrak{E}_z = 0. \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

Die Bedingungen dieses Grenzzustandes sind, wie der Vergleich von Gleichung (13) mit (14) zeigt, somit charakterisiert durch

$$\left. \begin{array}{l} \bar{E} = 0; \quad a_1 = 0, \quad a_2 = 0, \\ A_1 = 0, \quad A_2 = \frac{m\pi}{z_0}. \end{array} \right\} \quad (15)$$

Der Problemstellung gemäss können an Stelle von Gleichung (14) natürlich auch die Komponenten der $H_{n,0}$ -Welle angesetzt werden; dies bedeutet aber lediglich ein Austausch von m durch n und z_0 durch y_0 , was im Prinzip nichts Neues bringt.

2. Die Randbedingungen.

Über die von der Rohrwelle im Leiter induzierten Feldkomponenten orientiert anschaulich Fig. 2 am Beispiel der $H_{0,1}$ -Welle. Dabei sind die Systemgrössen im Leiterhohlraum mit dem Index 1,

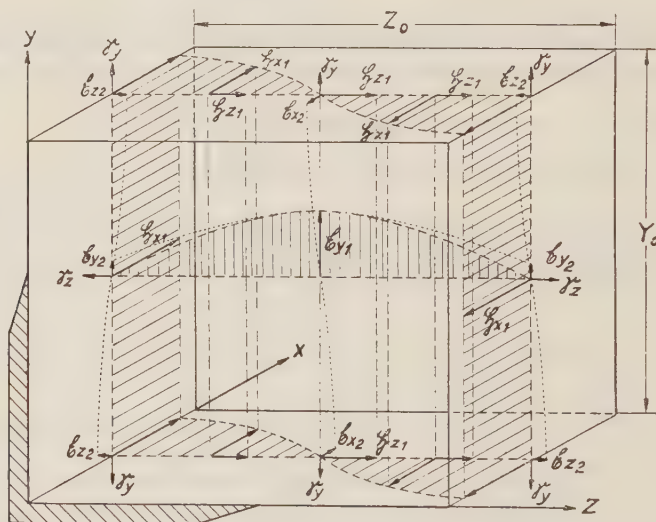


Fig. 2.

Die Feldstruktur der $H_{0,1}$ -Welle im verlustbehafteten Hohlleiter.

diejenigen im Leitermetall mit dem Index 2 gekennzeichnet. Von den im Idealfall vorhandenen drei Komponenten \mathfrak{H}_{x_1} , \mathfrak{H}_{z_1} und \mathfrak{E}_{y_1} (Felder strichliert eingezeichnet) erzeugen die beiden ersten in den Rohrwandungen die Feldstärken \mathfrak{E}_{x_2} , \mathfrak{E}_{y_2} und \mathfrak{E}_{z_2} , die ihrerseits entsprechende Feldveränderungen im Leiterhohlraum (punktirt eingezeichnet) zur Folge haben. Die Komponente \mathfrak{E}_{y_1} bewirkt auf Grund der Kontinuität des Verschiebungsstromes eine elektrische

Feldstärke senkrecht zur Wandebene, die aber infolge des enormen Unterschiedes zwischen den dynamischen Leitfähigkeiten der beiden Medien vernachlässigbar klein ist. \mathfrak{S}_y und \mathfrak{S}_z sind die im Leitermetall absorbierten Energieverluste.

Diese Betrachtung zeigt, dass in der Grenzschrift der beiden Medien in erster Näherung nur Tangentialkomponenten auftreten. Im Falle der $H_{0,m}$ -Welle sind dies die Primärkomponenten \mathfrak{H}_{x_1} und \mathfrak{H}_{z_1} und die in den Leiterwandungen induzierten Sekundärkomponenten \mathfrak{E}_{x_2} , \mathfrak{E}_{y_2} und \mathfrak{E}_{z_2} . Über die Grösse \mathfrak{H}_y lässt sich im obigen Sinne nichts aussagen; sie existiert erst in zweiter Ordnung und kann daher vernachlässigt werden.

Beiläufig sei noch erwähnt, dass später, bei der Einführung der Randbedingungen, der Nullsetzung von \mathfrak{H}_y (\mathfrak{H}_z im Falle der $H_{n,0}$ -Welle) eine eminente Bedeutung zukommt; erst diese Relation ermöglicht die eindeutige Bestimmung der früher eingeführten Konstanten und damit die Lösung des Problems überhaupt.

Die nachstehende Herleitung der Randbedingungen erfolgt ohne Beschränkung auf eine bestimmte Wellentype.

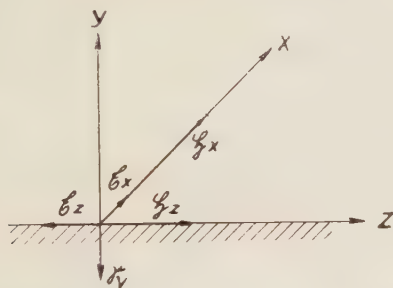


Fig. 3.

Auf Grund der Stetigkeitsbedingung der Tangentialkomponenten an Grenzflächen gelten für die Randkomponenten der Felder in den beiden Medien die Beziehungen

$$\mathfrak{H}_{2/\text{Rand}} = \mathfrak{H}_{1/\text{Rand}} \quad \text{und} \quad \mathfrak{E}_{1/\text{Rand}} = \mathfrak{E}_{2/\text{Rand}}. \quad (16)$$

Der Zusammenhang unter den Randkomponenten im Leitermetall ist grundsätzlich durch die Gleichungen (3) und (4) gegeben. Die geschlossene Auswertung des Gleichungssystems ist jedoch aus den in der Einleitung dargelegten Gründen nicht möglich. Zu einer sehr genauen Näherung gelangen wir aber im Hinblick auf die ausserordentlich kleine Eindringtiefe der Rohrwellen. Dies besagt offensichtlich, dass die räumliche Feldänderung in Richtung der Metalltiefe bedeutend grösser sein muss, als diejenige parallel zur Leiter-

oberfläche. Wir dürfen deshalb auf der linken Seite der Gleichungen (3) und (4) in erster Näherung sämtliche Glieder mit Ableitungen in Richtung der Metalloberfläche vernachlässigen. Die sechs Gleichungen reduzieren sich dann auf vier, die sich weiter in zwei unabhängige Systeme aufteilen lassen.

Wir berechnen zunächst die Feldstruktur in der unteren und oberen Wand des Wellenleiters. Die Lage der Randkomponenten ist für $y = 0$ in Fig. 3 dargestellt. Aus Gleichung (3) und (4) ergeben sich, wenn wir nur Feldänderungen nach y (Richtung Metalltiefe) berücksichtigen, die folgenden Feldgleichungen ($\sigma_2 \gg \omega \varepsilon_2$):

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial \mathfrak{H}_{z_2}}{\partial y} &= \sigma_2 \mathfrak{E}_{x_2} \\ -\frac{\partial \mathfrak{H}_{x_2}}{\partial y} &= \sigma_2 \mathfrak{E}_{z_2} \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial \mathfrak{E}_{z_2}}{\partial y} &= -j \omega \mu_2 \mathfrak{H}_{x_2} \\ \frac{\partial \mathfrak{E}_{x_2}}{\partial y} &= j \omega \mu_2 \mathfrak{H}_{z_2} \end{aligned} \right\} \quad (18)$$

Das Bestehen dieses Gleichungssystems fordert zwangsläufig die Aufteilung in die beiden unabhängigen Gleichungspaare

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial \mathfrak{H}_{z_2}}{\partial y} &= \sigma_2 \mathfrak{E}_{x_2} \\ \frac{\partial \mathfrak{E}_{x_2}}{\partial y} &= j \omega \mu_2 \mathfrak{H}_{z_2} \end{aligned} \right\} \quad (19)$$

$$\text{und} \quad \left. \begin{aligned} -\frac{\partial \mathfrak{H}_{x_2}}{\partial y} &= \sigma_2 \mathfrak{E}_{z_2} \\ \frac{\partial \mathfrak{E}_{z_2}}{\partial y} &= -j \omega \mu_2 \mathfrak{H}_{x_2} \end{aligned} \right\} \quad (20)$$

Zur Auflösung der Systeme (19) und (20) machen wir für die untere Metallwand den allgemeinen Ansatz (δ = Ausbreitungskonstante Richtung Metalltiefe)

$$\mathfrak{H}_2 = \mathfrak{H}_2|_{y=0} e^{\delta y} \quad \text{und} \quad \mathfrak{E}_2 = \mathfrak{E}_2|_{y=0} e^{\delta y}, \quad (21)$$

wobei y in bezug auf die Lage der Koordinaten (siehe Fig. 1) negativ zu nehmen ist. Durch Einführen von (21) erhält man aus (19) die Bestimmungsgleichungen

$$\delta \mathfrak{H}_{z_2}|_{y=0} = \sigma_2 \mathfrak{E}_{x_2}|_{y=0} \quad \text{und} \quad \delta \mathfrak{E}_{x_2}|_{y=0} = j \omega \mu_2 \mathfrak{H}_{z_2}|_{y=0} \quad (22)$$

und hieraus nach Eliminierung des Verhältnisses $\mathfrak{E}_{x_2}/\mathfrak{H}_{z_2}$ die Ausbreitungskonstante zu $\delta = \sqrt{j \omega \mu_2 \sigma_2}$. Der gleiche Wert findet sich auch aus den Bestimmungsgleichungen von (20), wonach

$$-\delta \mathfrak{H}_{x_2}|_{y=0} = \sigma_2 \mathfrak{E}_{z_2}|_{y=0} \quad \text{und} \quad \delta \mathfrak{E}_{z_2}|_{y=0} = -j \omega \mu_2 \mathfrak{H}_{x_2}|_{y=0}. \quad (23)$$

Damit ist der Zusammenhang unter den Randkomponenten in der unteren Metallwand aus (22) und (23) bestimmt durch

$$\mathfrak{E}_{x_2}|_{y=0} = \mathfrak{H}_{z_2}|_{y=0} \sqrt{\frac{j \omega \mu_2}{\sigma_2}} \quad \text{und} \quad \mathfrak{E}_{z_2}|_{y=0} = -\mathfrak{H}_{x_2}|_{y=0} \sqrt{\frac{j \omega \mu_2}{\sigma_2}}. \quad (24)$$

Das nämliche Vorgehen ergibt aus (19) und (20) die Randwertgleichungen der oberen Leiterwandung mit Hilfe des Ansatzes (y positiv)

$$\mathfrak{H}_2 = \mathfrak{H}_2|_{y=y_0} e^{-\delta y} \quad \text{und} \quad \mathfrak{E}_2 = \mathfrak{E}_2|_{y=y_0} e^{-\delta y}. \quad (25)$$

Man erhält nach kurzer Zwischenrechnung

$$\mathfrak{E}_{x_2}|_{y=y_0} = -\mathfrak{H}_{z_2}|_{y=y_0} \sqrt{\frac{j\omega\mu_2}{\sigma_2}} \quad \text{und} \quad \mathfrak{E}_{z_2}|_{y=y_0} = \mathfrak{H}_{x_2}|_{y=y_0} \sqrt{\frac{j\omega\mu_2}{\sigma_2}}. \quad (26)$$

Berücksichtigen wir in Gleichung (3) und (4) nur Feldänderungen nach der z -Richtung, so ergeben sich die Feldgleichungen in den beiden Seitenwänden, woraus unmittelbar die simultanen Gleichungspaare

$$\left. \begin{aligned} -\frac{\partial \mathfrak{H}_{y_2}}{\partial z} &= \sigma_2 \mathfrak{E}_{x_2} \\ \frac{\partial \mathfrak{E}_{x_2}}{\partial z} &= -j\omega\mu_2 \mathfrak{H}_{y_2} \end{aligned} \right\} \quad (27) \qquad \left. \begin{aligned} \frac{\partial \mathfrak{H}_{x_2}}{\partial z} &= \sigma_2 \mathfrak{E}_{y_2} \\ \frac{\partial \mathfrak{E}_{y_2}}{\partial z} &= j\omega\mu_2 \mathfrak{H}_{x_2} \end{aligned} \right\} \quad (28)$$

hervorgehen. Fig. 4 zeigt die Lage der Randkomponenten für $z = 0$.

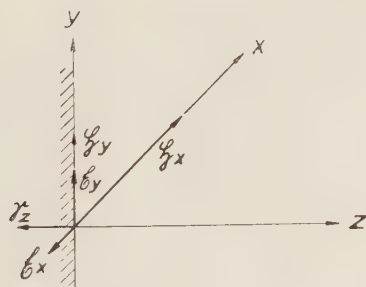


Fig. 4.

Die Auflösung von (27) und (28) ergibt mit Ansätzen analog (21) und (25) für die vertikalen Wände des Wellenleiters schliesslich die Randbedingungen:

$$\mathfrak{E}_{x_2}|_{z=0} = -\mathfrak{H}_{y_2}|_{z=0} \sqrt{\frac{j\omega\mu_2}{\sigma_2}}, \quad \mathfrak{E}_{y_2}|_{z=0} = \mathfrak{H}_{x_2}|_{z=0} \sqrt{\frac{j\omega\mu_2}{\sigma_2}} \quad (29)$$

$$\mathfrak{E}_{x_2}|_{z=z_0} = \mathfrak{H}_{y_2}|_{z=z_0} \sqrt{\frac{j\omega\mu_2}{\sigma_2}}, \quad \mathfrak{E}_{y_2}|_{z=z_0} = -\mathfrak{H}_{x_2}|_{z=z_0} \sqrt{\frac{j\omega\mu_2}{\sigma_2}}. \quad (30)$$

3. Die Einführung der Randbedingungen.

Im Falle der $H_{0,m}$ -Welle erhalten wir aus den Gleichungen (24), (26), (29b) und (30b) mit Berücksichtigung von (16) nunmehr die folgenden Randbedingungen:

$$\left. \begin{aligned} \mathfrak{E}_{x_1/y=0} &= \mathfrak{H}_{z_1/y=0} \mathfrak{z}_2 \\ \mathfrak{E}_{y_1/z=0} &= \mathfrak{H}_{x_1/z=0} \mathfrak{z}_2 \\ \mathfrak{E}_{z_1/y=0} &= \mathfrak{H}_{x_1/y=0} \mathfrak{z}_2 \end{aligned} \right\} \quad (31)$$

$$\left. \begin{aligned} \mathfrak{E}_{x_1/y=y_0} &= -\mathfrak{H}_{z_1/y=y_0} \mathfrak{z}_2 \\ \mathfrak{E}_{y_1/z=z_0} &= -\mathfrak{H}_{x_1/z=z_0} \mathfrak{z}_2 \\ \mathfrak{E}_{z_1/y=y_0} &= \mathfrak{H}_{x_1/y=y_0} \mathfrak{z}_2 \end{aligned} \right\} \quad (32)$$

Dabei ist zur Abkürzung

$$\sqrt{\frac{j\omega\mu_2}{\sigma_2}} = \mathfrak{z}_2 \quad (33)$$

gesetzt, entsprechend dem Wellenwiderstand im Leitermetall. An Stelle der Gleichungen (29a) und (30a) tritt hier, da \mathfrak{H}_y erst in zweiter Ordnung existiert (siehe Abschnitt 2), die weitere Forderung

$$\mathfrak{H}_{y_1} = 0, \quad (34)$$

unabhängig von y und z (vgl. den Idealfall Gleichung (14)).

Die in den Gleichungen (31) und (32) auftretenden Randwerte bestimmen wir nun aus Gleichung (13). Ihre Einführung in (31) ergibt die Beziehungen*)

$$\left. \begin{aligned} \frac{\gamma A_2 \bar{H} - j\omega \varepsilon_1 A_1 \bar{E}}{\gamma^2 + \omega^2 \mu_1 \varepsilon_1} \mathfrak{z}_2 &= -\bar{E} a_1 \\ \frac{\gamma A_1 \bar{E} - j\omega \mu_1 A_2 \bar{H}}{\gamma^2 + \omega^2 \mu_1 \varepsilon_1} a_2 &= \bar{H} \mathfrak{z}_2 \\ \frac{\gamma A_2 \bar{E} + j\omega \mu_1 A_1 \bar{H}}{\gamma^2 + \omega^2 \mu_1 \varepsilon_1} a_1 &= -\bar{H} \mathfrak{z}_2, \end{aligned} \right\} \quad (35)$$

analog aus (32)

$$\left. \begin{aligned} \frac{\gamma A_2 \bar{H} - j\omega \varepsilon_1 A_1 \bar{E}}{\gamma^2 + \omega^2 \mu_1 \varepsilon_1} \mathfrak{z}_2 \{a_1 \sin(A_1 y_0) + \cos(A_1 y_0)\} \\ \quad = \bar{E} \{a_1 \cos(A_1 y_0) - \sin(A_1 y_0)\} \\ \frac{\gamma A_1 \bar{E} - j\omega \mu_1 A_2 \bar{H}}{\gamma^2 + \omega^2 \mu_1 \varepsilon_1} \{a_2 \cos(A_2 z_0) - \sin(A_2 z_0)\} \\ \quad = -\bar{H} \mathfrak{z}_2 \{a_2 \sin(A_2 z_0) + \cos(A_2 z_0)\} \\ \frac{\gamma A_2 \bar{E} + j\omega \mu_1 A_1 \bar{H}}{\gamma^2 + \omega^2 \mu_1 \varepsilon_1} \{a_1 \cos(A_1 y_0) - \sin(A_1 y_0)\} \\ \quad = \bar{H} \mathfrak{z}_2 \{a_1 \sin(A_1 y_0) + \cos(A_1 y_0)\}. \end{aligned} \right\} \quad (36)$$

*) Hierbei erkennt man nun die Notwendigkeit der Bedingungsgleichung (12) denn ohne diese würden sich die orthogonalen Funktionen nicht wegheben und damit eine eindeutige Lösung verunmöglichen; m. a. W., die Randbedingungen müssen für jeden Punkt der Metalloberfläche identisch erfüllt sein.

Die Bedingung (34) liefert aus (13) unmittelbar den Zusammenhang

$$\gamma A_1 \bar{H} + j \omega \varepsilon_1 A_2 \bar{E} = 0. \quad (37)$$

Zur Ermittlung der Gleichungskonstanten müssen wir noch in (36) eine Vereinfachung vornehmen.

Entsprechend Gleichung (15) ist im idealen Fall $A_1 = 0$ und $A_2 = m\pi/z_0$. Bei endlicher Leitfähigkeit muss sich also A_1 um einen sehr kleinen Betrag von 0 unterscheiden, ebenso A_2 um einen sehr kleinen Betrag von $m\pi/z_0$. Wir machen deshalb den Ansatz

$$A_1 y_0 = \alpha \quad \text{und} \quad A_2 z_0 = m\pi + \beta \quad (m = 1, 2, 3 \dots),$$

wobei $\alpha, \beta \ll 1$, womit die trigonometrischen Funktionen in (36) mit grosser Näherung durch ihre Argumente α und β ausgedrückt werden können. Es folgt hiefür

$$\begin{aligned} \sin(A_1 y_0) &= \sin \alpha \cong \alpha = A_1 y_0 \\ \cos(A_1 y_0) &= \cos \alpha \cong 1 \\ \sin(A_2 z_0) &= \sin(m\pi + \beta) \cong (-1)^m \beta = (-1)^m (A_2 z_0 - m\pi) \\ \cos(A_2 z_0) &= \cos(m\pi + \beta) \cong (-1)^m. \end{aligned}$$

Nach Gleichung (15) sind auch a_1 und $a_2 \ll 1$, also ist angenähert

$$1 + a_1 A_1 y_0 \cong 1, \quad 1 + a_2 (A_2 z_0 - m\pi) \cong 1.$$

Mit diesen Vereinfachungen geht (36) schliesslich über in

$$\left. \begin{aligned} \frac{\gamma A_2 \bar{H} - j \omega \varepsilon_1 A_1 \bar{E}}{\gamma^2 + \omega^2 \mu_1 \varepsilon_1} \mathfrak{z}_2 &= \bar{E} (a_1 - A_1 y_0) \\ \frac{\gamma A_1 \bar{E} - j \omega \mu_1 A_2 \bar{H}}{\gamma^2 + \omega^2 \mu_1 \varepsilon_1} \{a_2 - (A_2 z_0 - m\pi)\} &= -\bar{H} \mathfrak{z}_2 \\ \frac{\gamma A_2 \bar{E} + j \omega \mu_1 A_1 \bar{H}}{\gamma^2 + \omega^2 \mu_1 \varepsilon_1} (a_1 - A_1 y_0) &= \bar{H} \mathfrak{z}_2. \end{aligned} \right\} \quad (38)$$

Das scheinbar überbestimmte System der Gleichungen (35), (37) und (38) muss nach den fünf Unbekannten \bar{E} , A_1 , A_2 und a_1 , a_2 nun derart aufgelöst werden, dass bei der Auswertung gleichzeitig einzelne Gleichungen identisch in einander übergehen und mithin die Zahl der Gleichungen schneller abnimmt als diejenige der Unbekannten.

Zunächst ergibt der Vergleich der korrespondierenden Ausdrücke in (35) und (38) die Beziehungen (womit die beiden Systeme identisch werden)

$$a_1 = \frac{1}{2} A_1 y_0 \quad \text{und} \quad a_2 = \frac{1}{2} (A_2 z_0 - m\pi). \quad (39)$$

Führen wir ferner aus (37)

$$\bar{E} = -\frac{\gamma}{j\omega\epsilon_1} \frac{A_1}{A_2} H \quad .$$

in (35) ein, so reduzieren sich die drei Gleichungen mit Berücksichtigung von Gleichung (9) auf zwei. Hieraus folgen wegen

$$\begin{aligned} \gamma^2 A_1^2 - \omega^2 \mu_1 \epsilon_1 A_2^2 &= -(\omega^2 \mu_1 \epsilon_1 - A_1^2) (\gamma^2 + \omega^2 \mu_1 \epsilon_1) \cong \\ &= -\omega^2 \mu_1 \epsilon_1 (\gamma^2 + \omega^2 \mu_1 \epsilon_1) \end{aligned}$$

die weiteren Beziehungen

$$a_1 = \frac{j\omega\epsilon_1}{A_1} \beta_2 \quad \text{und} \quad a_2 = -\frac{A_2}{j\omega\mu_1} \beta_2. \quad (40)$$

Aus (39) und (40) finden wir endlich die besonders interessierenden Konstanten A_1 und A_2 in der Form

$$A_1^2 = 2\beta_2 \frac{j\omega\epsilon_1}{y_0} \quad \text{und} \quad A_2 = \frac{m\pi}{z_0 + \frac{2\beta_2}{j\omega\mu_1}}. \quad (41)$$

Dies sind die gesuchten Lösungen der Gleichungssysteme (35) und (38), wie sich zusammen mit (39) und (40) unschwer verifizieren lässt. Ferner zeigt die Kontrolle, dass im Falle unendlicher Leitfähigkeit, oder nach Gleichung (33) für $\beta_2 \rightarrow 0$, die gefundenen Gleichungskonstanten in der Tat in den durch Gleichung (15) beschriebenen Grenzzustand übergehen.

4. Die Ausbreitungskonstante.

Sie ergibt sich unmittelbar aus (9), wonach

$$\gamma^2 = A_1^2 + A_2^2 - \omega^2 \mu_1 \epsilon_1,$$

durch Einsetzen von Gleichung (41). Schreibt man wegen $\left| \frac{2\beta_2}{j\omega\mu_1 z_0} \right| \ll 1$

$$A_2^2 = \frac{\left(\frac{m\pi}{z_0} \right)^2}{\left(1 + \frac{2\beta_2}{j\omega\mu_1 z_0} \right)^2} \cong \left(\frac{m\pi}{z_0} \right)^2 \left(1 - \frac{4\beta_2}{j\omega\mu_1 z_0} \right),$$

so folgt hiefür mit β_2 aus (33) die Gleichung

$$\gamma^2 = \left(\frac{m\pi}{z_0} \right)^2 - \omega^2 \mu_1 \epsilon_1 - 2 \frac{\mu_2}{\mu_1} \frac{\frac{\omega^2 \mu_1 \epsilon_1}{y_0} + \left(\frac{m\pi}{z_0} \right)^2 \frac{2}{z_0}}{\sqrt{j\omega\mu_2\sigma_2}}. \quad (42)$$

Die Einführung der Grenzfrequenz, definiert durch

$$f_{0,m} = \frac{m}{2z_0\sqrt{\mu_1\epsilon_1}} = \frac{m}{2z_0} \frac{v}{\sqrt{\mu_{r_1}\epsilon_{r_1}}} \quad (v = 3 \cdot 10^{10} \text{ cm/s}), \quad \text{und} \quad \frac{f}{f_{0,m}} = v$$

liefert für die Ausbreitungskonstante der $H_{0,m}$ -Welle im verlustfreien Dielektrikum schliesslich die Formel

$$\gamma = \frac{m\pi}{z_0} \sqrt{1 - \nu^2 - (1 - j) \frac{\mu_2}{\mu_1} \frac{\frac{\nu^2}{y_0} + \frac{2}{z_0}}{\sqrt{\pi \nu f_{0,m} \mu_2 \sigma_2}}}. \quad (43)$$

Das additive dritte Glied unter der Wurzel zeigt deutlich den Einfluss der endlichen Leitfähigkeit. Im besonderen folgt für die Grenzfrequenz $f = f_{0,m}$ ($\nu = 1$)

$$\gamma_{0,m} = j \frac{m\pi}{z_0} \sqrt{(1 - j) \frac{\mu_2}{\mu_1} \left(\frac{1}{y_0} + \frac{2}{z_0} \right) \frac{1}{\sqrt{\pi f_{0,m} \mu_2 \sigma_2}}}. \quad (44)$$

Für $\sigma_2 \rightarrow \infty$ geht (43) über in die bekannte Formel des idealen Wellenleiters.

Wir wollen noch den Ausdruck für das verlustbehaftete Dielektrikum beifügen, wozu wir nach Abschnitt 1 in Gleichung (42) an Stelle von $j\omega\epsilon_1$ einfach den Wert $j\omega\epsilon_1 + \sigma_1 = j\omega\epsilon_1(1 - j \tan \delta)$ (δ = Verlustwinkel) zu setzen haben. Man erhält nach einiger Zwischenrechnung die vollständige Darstellung

$$\gamma = \frac{m\pi}{z_0} \sqrt{1 - \nu^2 - \frac{\mu_2}{\mu_1} \frac{\frac{\nu^2}{y_0} (1 - \tan \delta) + \frac{2}{z_0}}{\sqrt{\pi \nu f_{0,m} \mu_2 \sigma_2}} + j \left\{ \nu^2 \tan \delta + \frac{\mu_2}{\mu_1} \frac{\frac{\nu^2}{y_0} (1 + \tan \delta) + \frac{2}{z_0}}{\sqrt{\pi \nu f_{0,m} \mu_2 \sigma_2}} \right\}} \quad (45)$$

und im speziellen für $f = f_{0,m}$ ($\nu = 1$)

$$\gamma_{0,m} = j \frac{m\pi}{z_0} \sqrt{\frac{\mu_2}{\mu_1} \frac{\frac{1 - \tan \delta}{y_0} + \frac{2}{z_0}}{\sqrt{\pi f_{0,m} \mu_2 \sigma_2}} - j \left\{ \tan \delta + \frac{\mu_2}{\mu_1} \frac{\frac{1 + \tan \delta}{y_0} + \frac{2}{z_0}}{\sqrt{\pi f_{0,m} \mu_2 \sigma_2}} \right\}}. \quad (46)$$

5. Die Dämpfungskonstante.

Wir beschränken uns hier auf den praktisch meist vorkommenden Fall des Dielektrikums aus Luft ($\epsilon_r = \mu_r = 1$, $\delta = 0$). Die Aufteilung von Gleichung (43) in Real- und Imaginärteil ergibt für die Leitungsdämpfung der $H_{0,m}$ -Welle den Ausdruck

$$\beta = \frac{m\pi}{z_0 \sqrt{2}} \sqrt{\sqrt{\left| 1 - \nu^2 - \frac{\mu_2}{\mu_1} \frac{\frac{\nu^2}{y_0} + \frac{2}{z_0}}{\sqrt{\pi \nu f_{0,m} \mu_2 \sigma_2}} \right|^2 + \left| \frac{\mu_2}{\mu_1} \frac{\frac{\nu^2}{y_0} + \frac{2}{z_0}}{\sqrt{\pi \nu f_{0,m} \mu_2 \sigma_2}} \right|^2} + 1 - \nu^2 - \frac{\mu_2}{\mu_1} \frac{\frac{\nu^2}{y_0} + \frac{2}{z_0}}{\sqrt{\pi \nu f_{0,m} \mu_2 \sigma_2}}}. \quad (47)$$

Np/cm,

gültig für $0 < f < \infty$, wobei $f_{0,m} = (m/2z_0) v$. Bei der Grenzfrequenz $f = f_{0,m}$ ($v = 1$) vereinfacht sich die Formel auf den Wert

$$\beta_{0,m} = \sqrt{\frac{\sqrt{2}-1}{2}} \frac{m\pi}{z_0} \sqrt{\frac{\mu_2}{\mu_1} \frac{1 + \frac{2}{y_0 + z_0}}{\sqrt{\pi f_{0,m} \mu_2 \sigma_2}}} \text{ Np/cm.} \quad (48)$$

Der aus Gleichung (47) hervorgehende Dämpfungsverlauf ist in Fig. 5 an dem Beispiel der $H_{0,1}$ -Welle eines Kupferrohres von 2000 MHz Grenzfrequenz dargestellt. Darin ist $z_0/y_0 = 3$, $\mu_2 = \mu_1 = 4\pi \cdot 10^{-9}$ H/cm und $\sigma_2 = 57 \cdot 10^4$ S/cm angenommen. Für tiefe Frequenzen nähert sich die Kurve dem konstanten Wert $\beta = m\pi/z_c$,

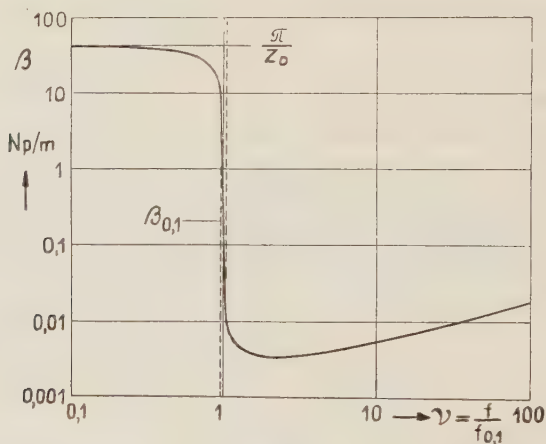


Fig. 5.

Dämpfungsverlauf der $H_{0,1}$ -welle — nach Gl. (47), ... Näherung nach Gl. (50).

während sie für höhere Frequenzen nach Durchlaufen des Durchlassbereiches gegen unendlich strebt. In der Umgebung der Grenzfrequenz ist vor allem der filtertechnisch interessante steile Kurvenabfall bemerkenswert. Zur Abschätzung dieser Dämpfungsänderung lässt sich aus Gleichung (47) für $f = f_{0,m}$ ($v = 1$) noch relativ leicht eine Formel herleiten. Man findet nach längerer Zwischenrechnung mit grosser Näherung

$$\left. \frac{d\beta}{df} \right|_{f=f_{0,m}} = -\frac{\sqrt{2}-1}{\sqrt{2}} \frac{m\pi^2}{z_0 v \beta_{0,m}} = -\sqrt{\sqrt{2}-1} \frac{\pi}{v} \sqrt{\frac{\sqrt{\pi f_{0,m} \mu_2 \sigma_2}}{\mu_1 \left(\frac{1}{y_0} + \frac{2}{z_0} \right)}} \text{ Np/cm, Hz.} \quad (49)$$

Hieraus folgt wegen $f_{0,m} = (m/2z_0) v$, dass bei steigender Ordnung m die Kurvensteilheit mit $m^{1/4}$, die Dämpfung dagegen mit $m^{3/4}$ zunimmt. Da die letztere für $f \ll f_{0,m}$ proportional m ist, so ver-

bessern sich mithin die Filtereigenschaften mit $\sqrt[3]{m}$; der Gewinn ist also sehr bescheiden.

Hinsichtlich der Abmessungen des Rohrquerschnittes ergeben sich umso günstigere Verhältnisse, je grösser y_0 gewählt wird, indem dadurch die Dämpfungsänderung vergrössert und die zugehörige Dämpfung gleichzeitig verkleinert wird. Bei einem gegebenen y_0 ist die Kurvensteilheit für $z_0 = 2 y_0$ ein Optimum.

Für Frequenzen wesentlich unterhalb und oberhalb der Grenzfrequenz lässt sich Gleichung (47) erheblich vereinfachen. Zu dem Zweck setzen wir

$$1 - \nu^2 = \pm p \quad \text{und} \quad \frac{\mu_2}{\mu_1} \frac{\frac{\nu^2}{y_0} + \frac{2}{z_0}}{\sqrt{\pi \nu f_{0,m} \mu_2 \sigma_2}} = q,$$

wobei das pos. Vorz. für $f \ll f_{0,m}$, das neg. Vorz. für $f \gg f_{0,m}$ gilt. Damit folgt aus Gleichung (47)

$$\beta = \frac{m\pi}{z_0 \sqrt{2}} \sqrt{\sqrt{(\pm p - q)^2 + q^2} \pm p - q}$$

und hieraus durch Reihenentwicklung

$$\beta_{|f \ll f_{0,m}} = \frac{m\pi}{z_0} \sqrt{p} \quad \text{und} \quad \beta_{|f \gg f_{0,m}} = \frac{m\pi}{z_0} \frac{q}{2\sqrt{p}},$$

oder mit Rückgängigmachung der obigen Substitution und einiger Umstellung:

$$\left. \begin{aligned} \beta &= \frac{m\pi}{z_0} \sqrt{1 - \nu^2} \quad \text{für } f \ll f_{0,m} \\ \text{und} \quad \beta &= \sqrt{\frac{2\pi\mu_2}{v\mu_1^2\sigma_2} \frac{\sqrt{m}}{z_0^{3/2}} \frac{\frac{z_0}{2y_0} \nu^{3/2} + \nu^{-1/2}}{\sqrt{\nu^2 - 1}}} \quad \text{für } f \gg f_{0,m}. \end{aligned} \right\} \quad (50)$$

Der Dämpfungsverlauf der beiden Näherungsformeln ist in Fig. 5 für die $H_{0,1}$ -Welle dieses Beispiels gestrichelt eingezeichnet. Die erste Gleichung stimmt mit der Dämpfungsformel des idealen Wellenleiters überein; das Fehlen von σ_2 zeigt, dass für $f \ll f_{0,m}$ der Einfluss der Leitungsverluste äusserst gering ist, was auch zu erwarten war. Der zweite Ausdruck, gültig für $f \gg f_{0,m}$, ist vollständig identisch mit dem in der Literatur angegebenen. Dort wurde die Formel jedoch nach anderen Verfahren (Poynting-Methode) hergeleitet, während sie hier aus der asymptotischen Entwicklung von Gleichung (47) hervorging. Diese Übereinstimmung beweist mithin die Richtigkeit der vorstehenden Störungsrechnung.

Hinsichtlich der Grössenordnung der in der Rechnung vernachlässigten Glieder zweiter und höherer Ordnung zeigt die numerische Überprüfung, dass bei Kupferleitern für Frequenzen bis 10^4 MHz die Zahlenwerte der obigen Formeln mit einem Fehler von höchstens 10^{-4} behaftet sind, welche Genauigkeit praktisch vollauf genügt.

Es liegt in der Art des Verfahrens, dass sich das obige Vorgehen zur Berechnung der Ausbreitungskonstante nur auf $H_{0,m}$ -Wellen anwenden lässt. Zur Gewinnung des allgemeinen Ausdruckes der $H_{n,m}$ -Welle müssten mehr Freiheitsgrade und damit mehr Bestimmungsgleichungen eingeführt werden, deren Auflösung aber, wenn überhaupt möglich, nicht so einfach ausfallen dürfte.

Die vorliegende Arbeit entstand im Hochfrequenzlaboratorium der Firma Brown, Boveri & Cie., Baden, Schweiz. Den Herren Dr. H. J. VON BAEYER und Dr. F. LÜDI danke ich bestens für die Überlassung des Themas und die Diskussion des Grundsätzlichen.

Literaturangabe.

R. J. SARBACHER and W. A. EDSON: „Hyper and Ultrahigh Frequency Engineering“, John Wiley & Sons, 1944. (Siehe auch das dort aufgeführte Literaturverzeichnis.)

S. RAMO and J. R. WHINNERY: „Fields and Waves in Modern Radio“, John Wiley & Sons, 1945.

R. W. P. KING, H. R. MIMNO and A. H. WING: „Transmission Lines, Antennas and Wave Guides“, McGraw-Hill, 1945.

J. KEMP: Electromagnetic Waves in Metall Tubes of Rectangular Cross-Section, Journal I. E. E., 1941, Vol. 88, Part III, p. 213.

S. KUHN: Calculation of Attenuation in Wave Guides, Journal I. E. E., March-May 1946, Vol. 93, Part III A, Nr. 4, p. 663.

Travail d'ionisation, effets de recombinaison et pouvoir d'arrêt de quelques gaz pour les particules α

par L. Dick, P. Falk-Vairant et J. Rossel.

(28. IV. 1947.)

I. Introduction.

L'étude des réactions nucléaires par chambre d'ionisation nécessite, pour la détermination de l'énergie, la connaissance du travail d'ionisation du gaz utilisé.

De plus, comme il est nécessaire d'une part pour des raisons de rendement, d'autre part pour diminuer l'influence des bords, de travailler à des pressions de l'ordre de plusieurs atmosphères, les effets de recombinaison, très marqués à ces pressions, et le pouvoir d'arrêt du gaz doivent être connus si l'on veut choisir des conditions optima de mesure.

L'ionisation des gaz par des particules lourdes chargées (par ex. particules α) a été étudiée surtout à des pressions inférieures ou égales à la pression atmosphérique, ce qui fournit peu d'indications utilisables. C'est pourquoi nous avons entrepris dans ce travail la détermination du travail d'ionisation, des courbes de saturation et du pouvoir d'arrêt pour les gaz suivants, aux pressions élevées usuelles dans les chambres d'ionisation:

N_2 , O_2 , Cl_2 , CO_2 , BF_3 , CH_4 et CF_4 .

II. Méthodes et dispositifs de mesure.

Nous avons employé les chocs d'ionisation déclenchés dans une chambre d'ionisation à gaz par les particules α produites par un dépôt actif de thorium.

Les mesures ont été faites sur le plan général suivant (fig. 1):

1^o Chambre d'ionisation. 2^o Source de haute tension, 500 à 12000 volts. 3^o Préamplificateur (lampe électromètre). 4^o Ampli-

ficateur proportionnel. 5° Oscillographe cathodique de contrôle.
6° Oscillographe à boucle et enregistreur à film photographique.

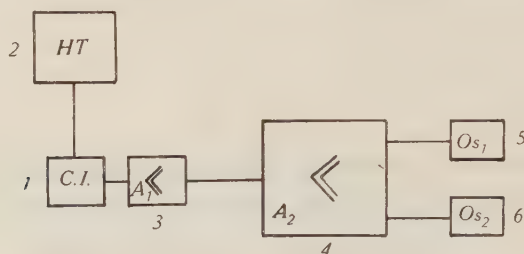


Fig. 1.

1° Chambres d'ionisation et amplificateur.

Pour la mesure des travaux d'ionisation nous avons utilisé deux chambres différentes, toutes deux à électrodes planes et anneau de garde, la première du type habituel à boîtier d'acier dimensionné pour 40 atm. et plus, la seconde pour la mesure dans Cl_2 , particulièrement étudiée pour les gaz corrosifs, chromée et polie intérieurement, à isolateurs de verre et déjà décrite en détail dans un travail antérieur¹⁾.

Le dépôt actif de Th était appliqué simplement sur l'électrode haute-tension de la chambre.

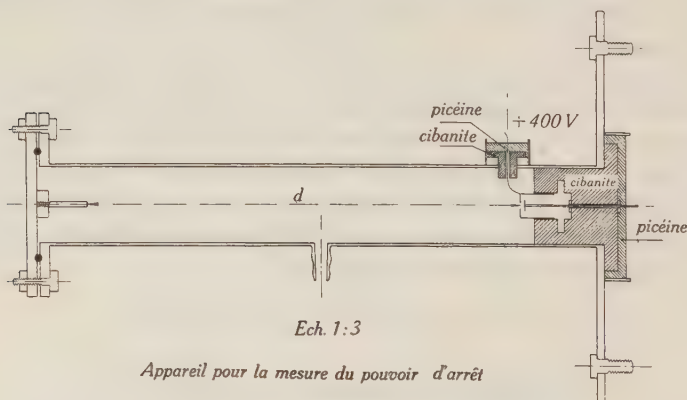


Fig. 2.

Le tube à pression variable indiqué schématiquement fig. 2 servait à la détermination du pouvoir d'arrêt par mesure de la pression critique correspondant à un parcours donné des particules α . Ce tube, ainsi que les chambres d'ionisation elles-mêmes, se vissait directement sur le capôt de l'étage préamplificateur.

Pour équiper ce dernier, nous avons choisi une pentode R. C. A. 38 chauffée sous 4 volts par accumulateurs, alimentée par piles pour la tension d'anode (45 volts) et d'écran (20 volts) et fonctionnant avec grille flottante.

L'amplificateur proportionnel, du type décrit récemment par BALDINGER²⁾, comporte 6 étages d'amplification avec contre-réaction par groupe de deux et un étage final attaquant l'oscillographe à boucle. Ce montage permet une alimentation des lampes entièrement par redresseurs y compris le chauffage.

Nous avons voué une attention spéciale aux constantes de temps de la lampe électromètre et de l'amplificateur, les choisissant aussi grandes que possible pour éviter des erreurs de mesure par perte de charges.

2° Remplissage et purification des gaz.

Pour N_2 , O_2 et CO_2 , nous avons rempli les chambres d'ionisation à des pressions variables directement à partir de bouteilles de gaz comprimé dont la pureté était assurée à plus de 99%. Pour les 4 derniers gaz, nous avons employé un dispositif permettant de les liquéfier avant de les introduire dans la chambre. Ce système nous a permis d'éliminer différentes impuretés (O_2 , N_2 , etc.) qui peuvent être mélangées au gaz: lorsque le gaz est liquéfié, le récipient de liquéfaction ainsi que toutes les conduites sont à nouveau évacués. Comme test de pureté nous avons mesuré la pression résiduelle au manomètre de mercure; celle-ci n'excédait jamais la pression de vapeur du gaz à la température du liquide réfrigérant (air liquide).

3° Etalonnage et préparation des sources.

L'étalonnage du dispositif amplificateur a été fait avant et après chaque mesure. Dans ce but on appliquait entre le plateau haute-tension et la cathode de la lampe électromètre des impulsions artificielles de tension de forme comparable et de durée inférieure aux chocs d'ionisation. Cette tension V est connue et peut être variée à volonté. On induit ainsi sur la grille une tension équivalente à celle produite par une charge d'ionisation $Q = CV$, où C est la capacité efficace de la chambre d'ionisation. Cette capacité se calcule par la formule pour le condensateur à anneau de garde avec une erreur de 2,5% environ. Remarquons que si l'on néglige l'effet de l'anneau de garde, la capacité, calculée par la formule ordinaire pour condensateur plan, devient dans notre cas plus faible d'un facteur 1,05. En conséquence, les travaux d'ionisation mesurés seraient multipliés par le même facteur.

Afin d'élucider cette question, nous avons mesuré la capacité de la chambre par comparaison avec un condensateur cylindrique spécial de grande précision*) en effectuant l'étalonnage alternativement avec l'une et l'autre capacité. Les résultats ont justifié, aux erreurs près de 2 à 3 %, l'emploi de la formule pour condensateur plan avec anneau de garde.

Pour la mesure des très faibles charges (détermination du pouvoir d'arrêt) la sensibilité de l'amplificateur pouvait être choisie de façon à détecter sans peine la charge de 1000 ions.

Comme nous l'avons déjà dit, nous avons utilisé les particules α du Th C' et Th C de 8,77 et 6,05 MeV respectivement. Une connaissance exacte de l'énergie des particules est nécessaire. A ce point de vue les dépôts actifs de thorium présentent l'avantage vis-à-vis d'autres sources (Po par exemple) d'avoir naturellement une épaisseur négligeable et par conséquent une influence nulle sur l'énergie.

Les préparations de base se faisaient simplement en maintenant une à deux heures au-dessus d'un sel de thorium d'une dizaine de mC une lame de cuivre mince portée à un potentiel négatif de quelques centaines de volts.

III. Mesures et résultats.

1^o Travail d'ionisation.

Par travail d'ionisation on entend l'énergie moyenne fournie pour la production d'une paire d'ions par une particule ionisante (dans notre cas une particule α). Le dépôt, appliqué sur l'électrode haute-tension par simple attouchement de la feuille de cuivre porte-substance, est dosé de telle manière que l'intensité de la source ne dépasse pas 100 particules par minute.

La répartition des trajectoires est pratiquement uniforme dans la demi-sphère limitée par le plateau du condensateur: tous les angles φ entre les trajectoires et les lignes de force du champ électrique sont également probables. On sait qu'il a été démontré théoriquement par JAFFÉ³⁾ et expérimentalement par MOULIN⁴⁾ en particulier que la recombinaison est fonction de l'angle φ , maximum pour $\varphi = 0^\circ$ et minimum pour $\varphi = 90^\circ$.

Lorsque nous parlons de recombinaison nous entendons par conséquent une recombinaison moyenne par rapport à φ . Les condi-

*) Ce condensateur a été mis obligeamment à notre disposition par le professeur P. HUBER de l'université de Bâle que nous tenons à remercier ici.

tions de mesure des énergies de réactions nucléaires par chambre d'ionisation sont généralement très analogues. Par conséquent, les résultats des mesures exposées ici, en particulier les courbes de saturation sont directement utilisables en pratique.

Si l'on reporte le nombre N de particules en fonction des charges mesurées Q , on obtient des courbes de distribution en cloche dont le maximum correspond à la charge moyenne \bar{Q} libérée par une particule α .

La fluctuation des charges mesurées augmente avec la pression, de plus la recombinaison gagne en intensité et produit un excédent de charges $Q < \bar{Q}$. Ces deux effets se manifestent par un élargissement et une asymétrie des courbes quand la pression augmente, visibles sur les courbes de distribution données à titre d'exemple dans la figure 3.

Toutes les mesures ont été faites à des pressions supérieures à 1 atm., la limite inférieure étant imposée par la condition que le

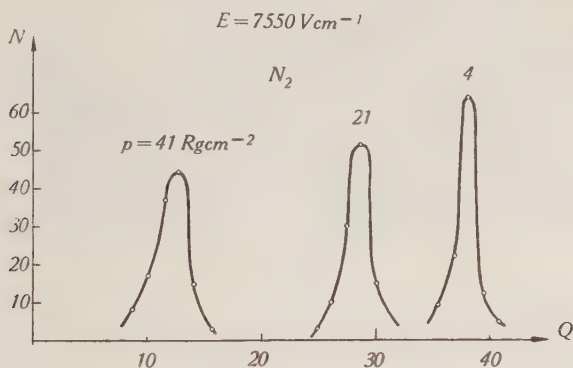


Fig. 3.

parcours des particules dans la chambre ne doit pas dépasser la distance des plateaux du condensateur (de l'ordre de 1 cm.). Ainsi la plus faible pression était de 4 atm. env. pour les gaz à pouvoir d'arrêt comparable à l'air, de 2 atm. env. pour les gaz à pouvoir d'arrêt supérieur. Avec un champ de l'ordre de 8000 V/cm. et ces pressions, la recombinaison est négligeable et nous pouvons nous attendre à la saturation.

Toutefois pour être certain de calculer le travail d'ionisation dans les conditions exactes de saturation, nous avons mesuré Q pour différentes pressions du gaz. On obtient ainsi une loi de variation de la charge en fonction de la pression permettant de déterminer la valeur limite de \bar{Q} par extrapolation. Si nous répétons l'expé-

rience pour plusieurs valeurs du champ électrique, nous obtenons avec les deux énergies $E_1 = 8,77$ et $E_2 = 6,05$ MeV une double famille de courbes qui apporte une bonne certitude à l'extrapolation.

Les figures 4, 5 et 6 donnent trois exemples de courbes obtenues en portant la charge par unité d'énergie Q/E en fonction de la pression avec le champ électrique comme paramètre. Pour les deux énergies E_1 et E_2 (courbes I et II) on obtient très sensiblement la même valeur extrapolée. Ce résultat confirme la très faible variation du travail d'ionisation moyen avec l'énergie des particules — du moins pour les énergies pas trop faibles. On voit sur les graphiques que l'extrapolation peut se faire avec une erreur inférieure à 2 %.

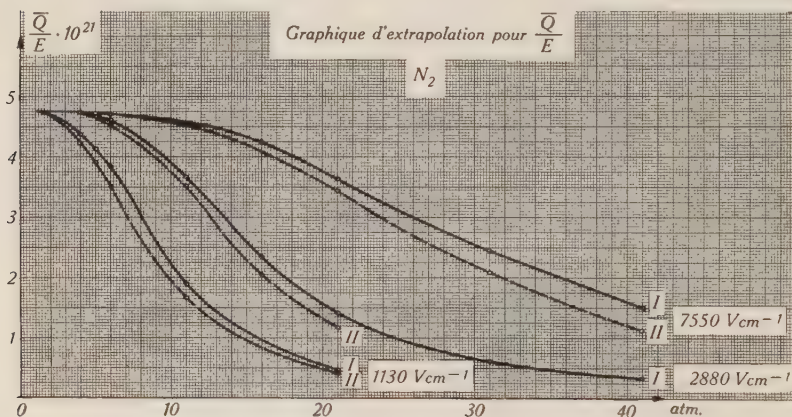


Fig. 4.

Dès que la recombinaison apparaît, les courbes I et II se séparent : les trajectoires correspondant à l'énergie la plus faible sont plus sensibles à la recombinaison. Ce phénomène s'explique facilement par l'augmentation d'ionisation en fin de parcours (courbe de BRAGG). Cette concentration plus forte d'ions favorise la recombinaison et a une importance relative plus grande pour les faibles parcours (E_2) que pour les grands (E_1).

A partir des valeurs extrapolées de \bar{Q}/E le travail d'ionisation moyen se détermine par la formule

$$J = (E/\bar{Q}) \cdot e \quad \text{avec} \quad e = 1,60 \cdot 10^{-19} \text{ C.}$$

Dans le tableau I nous donnons les valeurs de (\bar{Q}/E) extrapolées, le travail d'ionisation J et l'ionisation moyenne totale par rapport à celle de l'air $\bar{Q}/\bar{Q}_{\text{air}}$, calculée à partir des valeurs de la première colonne. Dans la dernière colonne sont indiquées les valeurs de

Q/Q_{air}^- données par les Intern. Crit. Tables (tome VI, p. 122). Ces valeurs ont été déterminées avec les particules α du RaC de 7,68

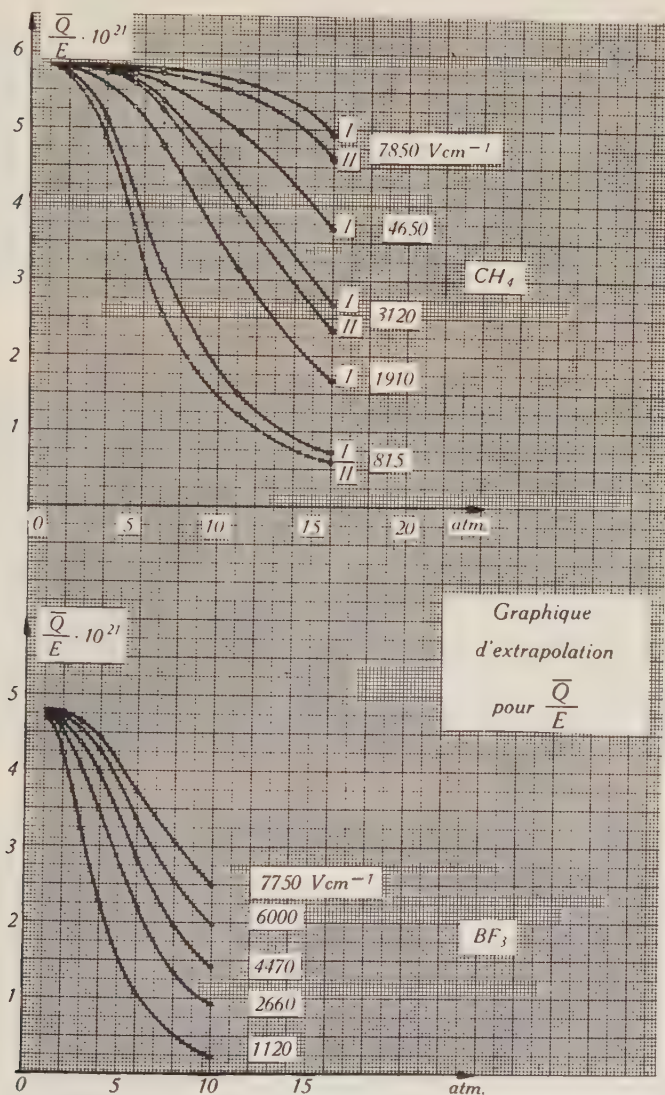


Fig. 5 et 6.

MeV. Cette énergie est intermédiaire entre les énergies que nous avons employées ce qui justifie la comparaison de ces dernières valeurs avec nos résultats. On voit que la concordance avec les

valeurs connues et mesurées par des méthodes différentes et dans d'autres conditions de pression est bonne.

Tableau I.

Gaz	$\left(\frac{Q}{E}\right)_{\text{extr.}} \cdot 10^{21} \text{ C}$	$J \text{ (eV)}$	$\frac{\bar{Q}}{Q_{\text{air}}}$	$\frac{Q}{Q_{\text{air}}} \text{ (Crit. Tables)}$
N ₂	4,75	33,7	0,95	0,96
O ₂	5,60	28,5	1,12	1,13
Air	5,00	32,1	1,00	1,00
Cl ₂	6,38	25,0	1,25	—
CO ₂	5,14	31,2	1,03	1,02
BF ₃	4,80	33,3	0,96	—
CH ₄	5,84	27,4	1,17	1,18
CF ₄	5,15	31,1	1,03	—

Les valeurs de J peuvent être assurées à 4% près et celles de \bar{Q}/Q_{air} à 1,5% près environ.

La valeur 33,7 eV pour N₂ est à la limite inférieure des valeurs habituellement données dans la littérature (par exemple 33,7 par GURNEY⁵) ou 35 eV par RUTHERFORD⁶). Le résultat pour Cl₂: 25,0 eV est compatible dans la limite d'erreurs avec la valeur $(23,5 \pm 1,2)$ eV déterminée dans un précédent travail¹).

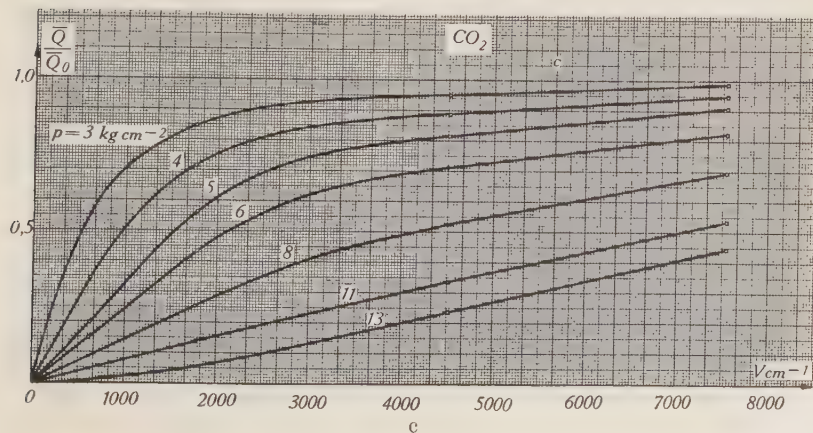
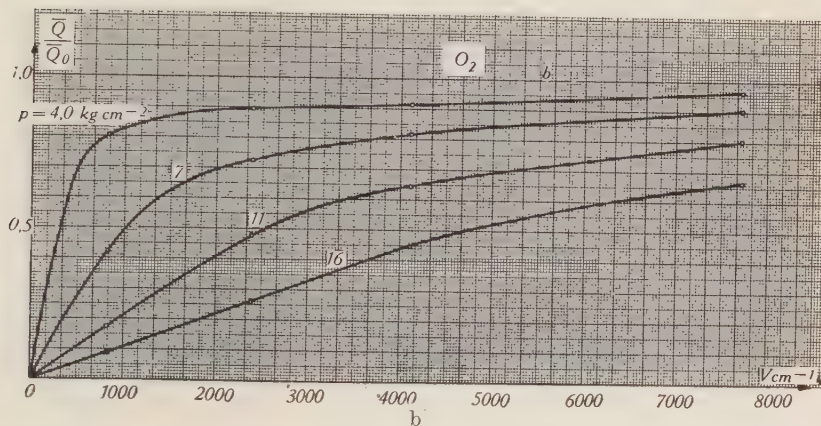
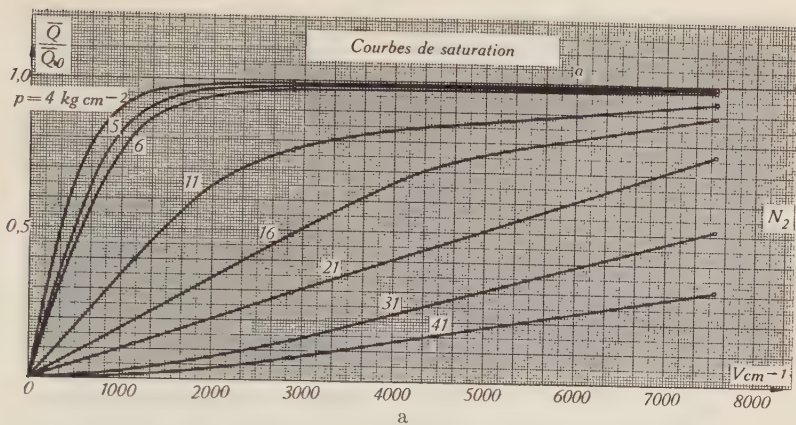
2° Courbes de saturation.

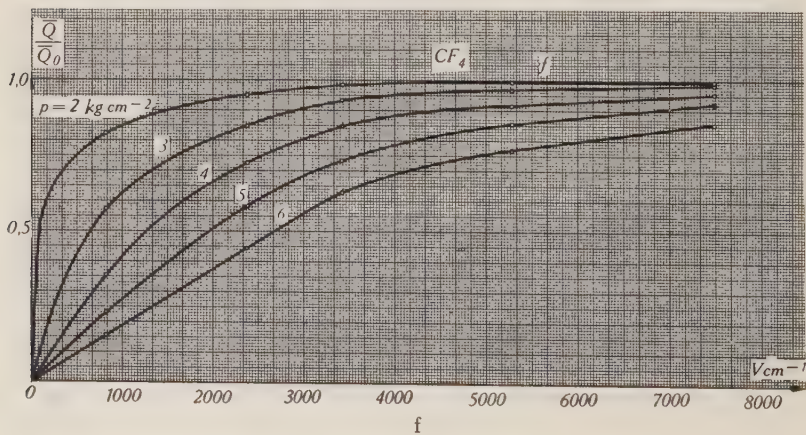
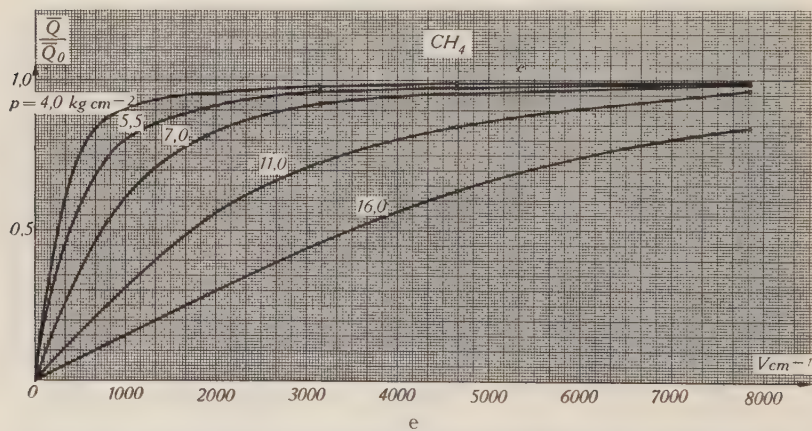
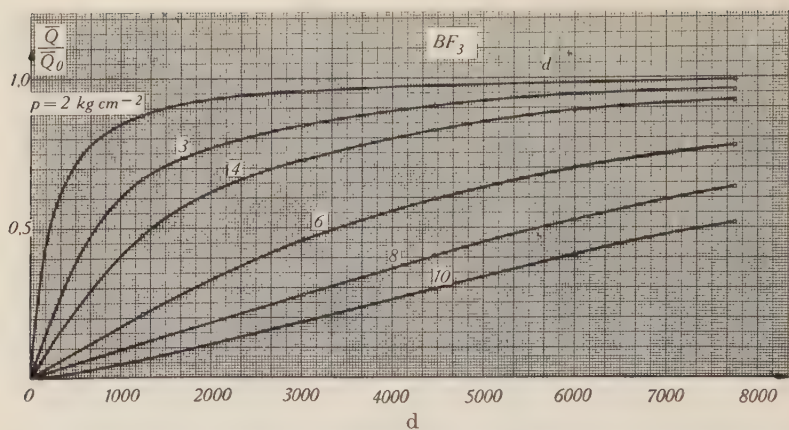
Par \bar{Q}_0 nous noterons la charge moyenne mesurée lorsque la recombinaison est négligeable (extrapolée). \bar{Q} indique comme précédemment la charge moyenne aux différentes conditions de pression et de champ électrique.

Les six graphiques suivants donnent les familles de courbes \bar{Q}/\bar{Q}_0 en fonction du champ électrique E , avec la pression comme paramètre. Nous n'avons tracé que les courbes correspondant à l'énergie de 8,77 MeV. Comme l'indiquent les graphiques d'extrapolation, les valeurs relatives à l'énergie de 6,05 MeV sont inférieures de quelques pourcents dans le domaine de forte recombinaison.

La validé des graphiques est limitée aux domaines pour lesquels le temps de charge est au moins 30 fois plus petit que la constante de temps caractéristique de l'amplificateur. Celle-ci étant pour la lampe électromètre de $3 \cdot 10^{-1}$ sec. et pour le premier étage de $8,7 \cdot 10^{-2}$ sec., le domaine à rejeter (perte de charge > 4%) est défini pour l'azote par condition $p/E \geq 9 \cdot 10^{-3}$ atm. volt⁻¹. cm., ce qui représente une petite région autour de l'origine. Dans cette région, les valeurs de \bar{Q}/\bar{Q}_0 ont tendance à être trop faibles.

Pour les autres gaz, la valeur critique de p/E varie suivant les mobilités ioniques mais reste du même ordre de grandeur.





3° Remarque sur la détermination du travail d'ionisation à l'aide d'un canon à particules α .

Si l'on veut obtenir des particules α d'une direction déterminée, on peut focaliser les trajectoires par un canal cylindrique de faible diamètre percé dans le plateau du condensateur et débouchant dans le volume efficace. La source utilisée doit être intense si l'on ne veut pas avoir un faisceau trop faible. Dans le cas du dépôt de Th, la radiation γ est puissante et l'expérience nous a montré qu'il était nécessaire d'établir un plateau massif de Pb pour éviter une ionisation trop intense par les γ .

Nous avons varié l'énergie dissipée dans le volume efficace en changeant la pression p du gaz dans la chambre.

Le parcours efficace (contenu entre les deux plateaux) pour une température du gaz T et une pression p , ramené aux conditions ordinaires $T_0 = 288^\circ \text{ K}$ et $p_0 = 760 \text{ mm Hg}$ vaut :

$$R_{\text{eff}} = R_0 - \frac{p s T_0}{p_0 T} d$$

où R_0 est le parcours dans l'air aux conditions ordinaires (8,57 cm. pour ThC'), s le pouvoir d'arrêt du gaz et d la longueur du canal.

A partir de R_{eff} on détermine l'énergie efficace E_{eff} au moyen des courbes énergie-parcours de HOLLOWAY et LIVINGSTON⁷).

La formule ci-dessus suppose que l'ouverture du canal est libre et non fermé par une fenêtre de mica ou d'aluminium. C'est dans ces conditions que nous avons effectué une série de mesures à pression variable et en changeant le diamètre du canal (percé perpendiculairement au plateau). Les courbes ci-dessous (fig. 7), donnent les résultats obtenus dans l'azote pour différents diamètres. En ordonnées est porté le rapport \bar{Q}/Q_0 de la charge effectivement recueillie à la charge véritable, libérée dans le volume efficace et calculée au moyen de E_{eff} et du travail d'ionisation $J = 33,7 \text{ eV}$ pris dans la table I; l'énergie efficace E_{eff} reportée en abscisse est une mesure de la pression régnant dans la chambre, les faibles valeurs de E_{eff} correspondant aux grandes pressions (8 et 3 atm. correspondent resp. à 0,5 et 5 MeV environ).

Au lieu d'être horizontales ou légèrement croissantes, les courbes décroissent en tendant vers la valeur unité. Ceci indique que l'influence de la recombinaison est surcompensée par un effet parasite en relation avec le diamètre du canal. Ce résultat peut s'expliquer par le fait qu'une partie des lignes de force du champ pénètre dans l'orifice du canal et recueille un excédent d'ions croissant avec le diamètre de l'ouverture et la ionisation spécifique, c'est-à-dire la pression du gaz.

Comme la longueur du canal (de l'ordre de 10 mm) était mesurable avec une précision de 0,05 mm. et que d'autre part l'angle solide défini par le canal ne pouvait introduire une indétermination de plus de 1 % sur l'énergie, la convergence des courbes vers l'unité

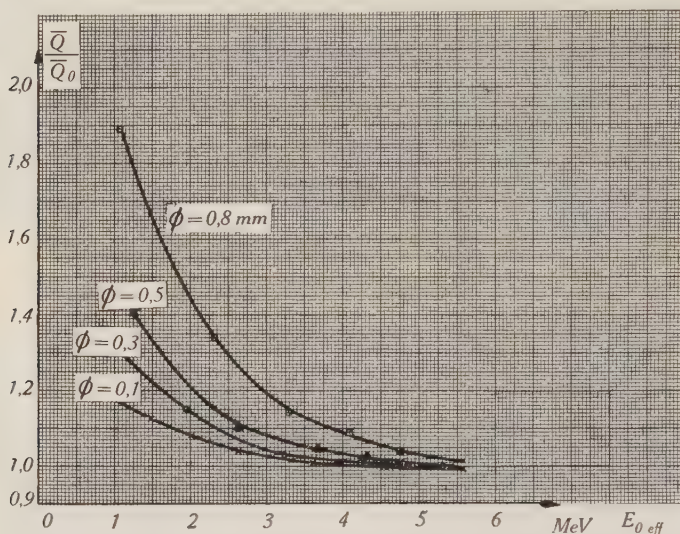


Fig. 7.

est une bonne confirmation de la valeur $J = 33,7 \text{ eV/paire}$ déterminée pour N_2 au § 1.

Remarquons que l'emploi d'une fenêtre supprime l'effet d'orifice observé, mais introduit une certaine erreur dans la détermination de l'énergie.

4° Mesure du pouvoir d'arrêt.

Nous avons employé l'appareil de la fig. 2. Une préparation très intense est collée sur la base du cylindre A . Pour les basses pressions les particules pénètrent dans le condensateur C et l'on observe à l'oscillographe l'ionisation produite à l'intérieur. En augmentant progressivement la pression, l'ionisation augmente, passe par un maximum et tombe brusquement à zéro (fig. 8).

Nous déterminons la pression critique p_0 pour laquelle les particules α n'atteignent plus le condensateur. La pression est mesurée par un manomètre à mercure.

Grâce à la forte intensité de la source, on détermine sans peine à $\pm 0,5 \text{ mm}$. la hauteur du mercure correspondant à la disparition de l'ionisation.

Pour la mesure dans Cl_2 nous avons séparé le gaz et le mercure du manomètre par une couche d'huile de paraffine de 2 cm. d'épaisseur.

Pour chaque gaz nous avons fait trois mesures en prenant pour distance d de la source au condensateur les trois valeurs 127,7 120,8 et 107,8 mm.

De la pression critique on déduit facilement le parcours R_0 aux conditions normales de pression et température (760 mmHg, 15°C).

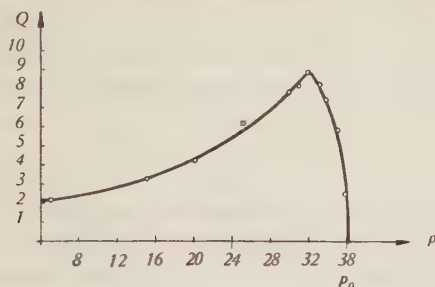


Fig. 8.

Le seuil de sensibilité de l'amplificateur crée une indétermination sur la distance d se laissant évaluer à 0,5 mm. Admettant d'autre part une erreur dans la mesure de la pression de 1 mmHg, il s'ensuit une erreur totale sur le parcours de 1% environ, ce qui est admissible pour le but que nous nous proposons.

Les variations observées entre les trois mesures sont de cet ordre de grandeur. Pour l'air par exemple :

d	R_0
107,8	8,56
120,8	8,54
127,7	8,61
moyenne 8,57 cm.	

Prenant le parcours dans l'air comme référence, nous avons pour le pouvoir d'arrêt :

$$s = \frac{R_0(\text{air})}{R_0(\text{gaz})}.$$

Les résultats que nous donnons ci-après sont déduits de la moyenne des trois mesures.

Théoriquement les parcours dans les gaz simples peuvent se calculer à partir de la formule de BETHÉ (voir par exemple ⁸⁾), donnant la perte d'énergie par unité de longueur de trajectoire :

$$-\frac{dT}{dx} = \frac{4\pi Z^2 e^4 NZ}{m v^2} \cdot \log \frac{2 m v^2}{E} \quad (1)$$

où $(z \cdot e)$ et v = charge et vitesse des particules freinées.

Z = Nombre d'électrons des atomes freinants en nombre N par cm^3 .

E = Energie moyenne d'excitation de ces atomes et m = masse de l'électron.

Le procédé généralement utilisé est de déterminer la grandeur E expérimentalement par ajustement aux valeurs mesurées. MANO¹⁾ a de cette façon déterminé E pour un certain nombre de substances.

On pourrait trouver E pour les éléments B, C, F, Cl qui nous intéressent par interpolation au moyen des valeurs connues. Cependant les points ne s'ordonnent pas très bien sur une courbe continue. Le pouvoir freinant par rapport à l'air

$$\sigma = \left(\frac{dT}{dx} \right)_{\text{gaz}} / \left(\frac{dT}{dx} \right)_{\text{air}} \quad (2)$$

dont MANO donne pour différentes énergies une liste complète se laisse par contre interpoler plus exactement. Nous avons ainsi déterminé, pour une énergie des particules α de 4,46 MeV soit une vitesse de $1,5 \cdot 10^9$ cm/sec, les σ des éléments en question et calculé ensuite les valeurs correspondantes de E en prenant pour l'air $E = 86$ eV.

Comme la formule de BETHE n'est pas applicable en fin de trajectoire où la vitesse des particules α tombe à des valeurs comparables à celle des électrons orbitaux de l'atome freinant, nous avons limité nos calculs à la portion de trajectoire comprise entre l'énergie initiale de 8,77 MeV et une énergie finale de 1 MeV correspondant à une vitesse de $0,7 \cdot 10^9$ cm/sec. Cette vitesse est supérieure à la vitesse électronique critique — que l'on peut prendre, suivant MANO égale à $v = \sqrt{2E/m}$ (m = masse de l'électron) — pour tous les éléments en question à part Cl_2 où elle est un peu plus faible.

Pour l'air la perte d'énergie de 7,77 MeV correspond déjà à plus de 90% du parcours total. Comme en outre ce pourcentage varie peu d'un gaz à l'autre, le pouvoir d'arrêt atomique par rapport à l'air pourra sans erreur appréciable être posé égal au rapport de ces parcours partiels dans l'air et dans le gaz, soit:

$$s \approx \left(\frac{E_0}{E} \right)^2 \frac{Z}{Z_0} \cdot \frac{Li(\alpha_0 v_1^4) - Li(\alpha_0 v_2^4)}{Li(\alpha v_1^4) - Li(\alpha v_2^4)} \quad (3)$$

où Z = Nombre d'électrons de l'atome freinant,

$\alpha = \frac{4m^2}{E^2}$; v_1 et v_2 = vitesses initiale et finale des particules α

et $Li(x) = \int_0^x \frac{ds}{\log s}$. L'indice 0 se rapporte à l'air.

Le procédé usuel de calcul du pouvoir d'arrêt d'un gaz ou d'une substance moléculaire admet la règle d'additivité des pouvoirs d'arrêt atomiques des composants, par exemple pour une demi-molécule de CF_4 : $s_{\text{CF}_4} = \frac{1}{2}(s_{\text{C}} + 4s_{\text{F}})$.

Une autre méthode consiste à appliquer la règle des mélanges aux énergies d'excitation pour calculer une valeur moyenne de E pour la molécule composée et à employer ensuite la formule des gaz simples.

Il peut être intéressant de comparer les résultats expérimentaux avec les valeurs calculées par ces deux procédés.

Le tableau II indique l'ensemble des résultats obtenus.

La colonne 2 donne à côté de quelques valeurs de σ dues à MANO celles déterminées par interpolation. Les énergies d'excitation E qui s'en déduisent à partir de l'expression (2) (les 4 dernières calculées par la règle des mélanges) et les pouvoirs d'arrêt s dérivés des E par la formule (3) sont portés dans les colonnes 3 et 4. La colonne 5 contenant les pouvoirs d'arrêt pour les gaz à molécules composées est double: I donne les s calculés par la règle d'additivité des pouvoirs d'arrêt des composants et II ceux qu'on déduit des E obtenus par la règle des mélanges. Enfin la colonne 6 indique les valeurs de s que nous avons mesurées et la colonne 7 quelques valeurs expérimentales qu'on peut trouver dans les Int. Crit. Tables.

Tableau II.

Atome	σ	E (eV)	s_{th}	s_{th} par loi d'additivité		s_{exp}	s_{exp} (Crit. Tables)
				I	II		
$\frac{1}{2} \text{H}_2$	0,207	16,0	0,28				
B	0,76*	60,3	0,76				
C	0,86*	76,4	0,85				
$\frac{1}{2} \text{N}_2$	0,983	82	0,97			0,99	0,98-0,99
$\frac{1}{2} \text{O}_2$	1,058	100	1,06			1,07	1,06-1,08
Air	1,000	86	1,000			1,000	
$\frac{1}{2} \text{F}_2$	1,15*	113,3	1,18				
$\frac{1}{2} \text{Cl}_2$	1,82*	195,5	1,80			2,02	
$\frac{1}{2} \text{CO}_2$		92,13		1,48	1,50	1,52	1,49-1,50
$\frac{1}{2} \text{BF}_3$		100,05		2,14	2,12	2,14	
$\frac{1}{2} \text{CH}_4$		28,08		0,98	0,93	0,92	0,86-0,91
$\frac{1}{2} \text{CF}_4$		24,39		2,78	2,72	2,70	

* Valeurs interpolées.

Une première remarque qui s'impose concerne les valeurs de σ et s_{th} . Ces valeurs sont très peu différentes les unes des autres ce qui provient du fait que σ est une fonction variant très peu avec l'énergie des particules α et de ce que les valeurs indiquées de σ se rapportent à une énergie moyenne (4,46 MeV); c'est pourquoi en première approximation on peut, comme on le fait généralement, identifier σ et s .

Cependant l'examen du tableau montre que, comme on peut s'y attendre, les s_{th} des gaz composés correspondent mieux avec l'expérience s'ils sont calculés à partir de s que de σ .

Des deux méthodes de composition, celle faisant usage de la valeur moyenne pour E semble meilleure. La concordance avec les valeurs expérimentales est bonne (à 1% près environ, donc à l'intérieur des erreurs de mesure) à l'exception de Cl_2 où la forte discrédance de 12% pourrait s'expliquer par une certaine anomalie de la valeur de E .

Nous tenons à exprimer notre vive gratitude à M. le professeur SCHERRER pour son intérêt et les facilités qu'il nous a accordées.

Zurich, Institut de Physique de l'E. P. F.

Bibliographie.

- ¹⁾ GIBERT, A., ROGGEN, F. et ROSSEL, J., *Helv. Phys. Acta* **17**, 117 (1944).
 - ²⁾ BALDINGER, E., *Helv. Phys. Acta* **19**, 423 (1946).
 - ³⁾ JAFFE, G., *Ann. d. Physik* **42**, 303 (1913).
 - ⁴⁾ MOULIN, *Ann. Chim. et Phys.* **3**, 21 (1910) et **1**, 22 (1911).
 - ⁵⁾ GURNEY, R. W., *Proc. Roy. Soc.* **107**, 332 (1925).
 - ⁶⁾ RUTHERFORD, E. et coll. *Radiations from radioactive substances* Cambridge (1930).
 - ⁷⁾ HOLLOWAY, M. G. et LIVINGSTON, M. S., *Phys. Rev.* **54**, 18 (1938).
 - ⁸⁾ LIVINGSTON, M. S. et BETHE, H. A., *Rev. of Mod. Phys.* **9** (1937).
 - ⁹⁾ MANO, G., *Ann. de Phys.* **1**, 407 (1934) et *J. de Phys. et Rad.* **5**, 628 (1934).
-

Kernphotoeffekt unter Emission eines Protons

von O. Hirzel und H. Wäffler.

(11. VII. 1947.)

Zusammenfassung. Mit der Lithium-Gammastrahlung werden die Elemente Mg, Si, Ti, Cr, Se, Mo, Pd, Cd, Sn auf einen (γ, p) -Prozess hin untersucht. Es gelingt, an folgenden Isotopen ein Proton abzulösen: Mg^{25} , Mg^{26} , Si^{29} , Si^{30} , Ti^{50} , Cr^{53} , Se^{77} , Mo^{98} , Pd^{105} , Cd^{111} , Cd^{112} , Cd^{113} , Sn^{117} und Sn^{118} . Das Wirkungsquerschnittsverhältnis $\sigma(\gamma, p)/\sigma(\gamma, n)$ für diese Kerne wird bestimmt. Nach der auf der Bohrschen Modellvorstellung fussenden Theorie stellt dieses Verhältnis das Verhältnis der Austrittswahrscheinlichkeiten des Protons, bzw. Neutrons, aus dem Zwischenkern dar. Die so berechneten theoretischen Werte erweisen sich jedoch gegenüber den experimentellen als um einen Faktor 100 bis 1000 zu klein.

I. Einleitung.

Die beim Protoneinfangprozess $\text{Li}^7(p, \gamma) \text{Be}^8$ entstehende Gammastrahlung besitzt eine Quantenenergie von 17,2 MeV. In früheren Arbeiten ist es gelungen, mit diesen Quanten an nahezu allen Elementen einen Kernphotoeffekt unter Emission eines Neutrons ((γ, n) -Prozess) auszulösen^{1) 2)}. Eine Ausnahme bildet das Kohlenstoffisotop C^{12} , bei welchem das Neutron eine grössere Bindungsenergie als 17,2 MeV, nämlich 18,3 MeV, besitzt. Da nun ein Proton durch die Kernkräfte im allgemeinen gleich stark gebunden ist wie ein Neutron, so sind auch (γ, p) -Reaktionen energetisch möglich. Der Emission von Protonen wirkt jedoch ausser den Kernkräften noch der COULOMB'sche Potentialwall entgegen. Die Höhe dieses Walles für ein Element mit der Kernladungszahl Z ist gegeben durch

$$V = \frac{Z \cdot e^2}{R}$$

R bedeutet hier den Kernradius, d. h. die Entfernung vom Symmetriezentrum des Kerns, bei der sich Coulomb- und Kernkraft das Gleichgewicht halten. Da R proportional zur dritten Wurzel

¹⁾ W. BOTHE, W. GENTNER: Z. Physik **106**, 236 (1937) und Z. Physik **112**, 45 (1939).

²⁾ O. HUBER, O. LIENHARD, P. SCHERRER, H. WÄFFLER: H. P. A. XVI, 33 (1943) sowie O. HUBER, O. LIENHARD und H. WÄFFLER: H. P. A. XVII, 195 (1945). Eine weitere Arbeit über den (γ, n) -Prozess erscheint demnächst.

aus dem Atomgewicht A und dieses annähernd gleich der doppelten Kernladungszahl ist, so steigt also V ungefähr mit $Z^{2/3}$. Das bedeutet, dass der Austritt eines Protons aus dem Kern mit wachsendem Z unwahrscheinlicher wird. Dieser Z -Abhängigkeit wirkt jedoch bis zu mittleren Ordnungszahlen ein mit Z zunehmender Absorptionsquerschnitt für die Lithium-Gammastrahlung entgegen.

Bis zum Erscheinen der vorliegenden Untersuchung konnte mit der Lithium-Gammastrahlung nur ein einziger (γ, p) -Prozess: $\text{Mg}^{26}(\gamma, p)\text{Na}^{25}$ nachgewiesen werden³⁾. Das Auftreten dieser Reaktion wurde von BALDWIN und KLAIBER⁴⁾ mit der Röntgenbremsstrahlung von 100 MeV-Elektronen bestätigt. Die genannten Autoren fanden ferner die Prozesse $\text{Mg}^{25}(\gamma, p)\text{Na}^{24}$, $\text{Si}^{29}(\gamma, p)\text{Al}^{28}$, $\text{Si}^{30}(\gamma, p)\text{Al}^{29}$ sowie auch zahlreiche Kernphotoeffekte, welche unter gleichzeitiger Emission mehrerer Teilchen ablaufen.

Im folgenden wird nun mit der Lithium-Gammastrahlung der (γ, p) -Prozess an den Isotopen Mg^{25} , Mg^{26} , Si^{29} , Si^{30} , Ti^{50} , Cr^{53} , Se^{77} , Mo^{98} , Pd^{105} , Cd^{111} , Cd^{112} , Cd^{113} , Sn^{117} und Sn^{118} nachgewiesen. Der Nachweis erfolgt in allen Fällen vermittelt der Radioaktivität des Endkerns, wodurch die Auswahl unter den an sich möglichen Prozessen stark eingeschränkt wird. Als weitere Bedingung für die Sicherstellung der (γ, p) -Reaktionen kommt hinzu, dass die in diesen Prozessen induzierten Aktivitäten nicht von den meist viel stärkeren, aus den (γ, n) -Prozessen an den Nachbarisotopen desselben Elementes stammenden Aktivitäten verdeckt werden.

Es zeigt sich, dass bis zu Kernladungszahlen $Z \sim 50$ in allen untersuchten, für den Nachweis günstig liegenden Fällen der (γ, p) -Prozess auftritt. Für $Z > 50$ konnte ein sicherer Nachweis dieser Reaktion nicht erbracht werden, was auf Grund der oben erwähnten Z -Abhängigkeit der Austrittswahrscheinlichkeit für Protonen verständlich erscheint.

Die durch (γ, p) -Reaktionen induzierten Aktivitäten sind durchwegs sehr schwach. Dies zwang uns dazu: 1. mit Hilfe einer leistungsfähigen Ionenquelle einen möglichst grossen Protonenstrom und damit eine grosse Ausbeute an Gammaquanten zu erzeugen, und 2. mit einer wirksamen Antikoinzidenzanordnung den Nulleffekt der Zählrohre, mit denen die Aktivitäten gemessen werden, herunterzusetzen.

³⁾ O. HUBER, O. LIENHARD, P. SCHERRER, H. WÄFFLER: H.P.A. XVII, 139 (1944).

⁴⁾ G. C. BALDWIN, G. S. KLAIBER: Phys. Rev. **70**, 259 (1946).

II. Apparatur.

Die Anlage zur Erzeugung der Gammastrahlung besteht zur Hauptsache aus Hochspannungsapparatur, Ionenquelle, Beschleunigungsrohr mit Pumpaggregat und Lithiumtarget. Die Apparatur wurde im wesentlichen schon früher beschrieben²⁾. Neu sind die Ionenquelle und die Hochspannungsanlage. Letztere besteht aus einem Transformator 500/60 000 Volt mit vorgeschaltetem Reguliertransformer und nachfolgendem Gleichrichter-Kondensatorenaggregat, das die 60 KV-Wechselspannung gleichrichtet und verzehnfacht, wobei eine maximale Gleichspannung von 500–600 KV erreicht werden kann*). Diese Spannung genügt vollauf, da der Protoneinfangprozess an Lithium bei einer Protonenenergie von 440 KeV resonanzartig einsetzt und seine Ausbeute mit wachsender Energie konstant bleibt.

Die Ionenquelle.

Die ersten Messungen wurden noch mit der von O. HUBER, O. LIENHARD und H. WÄFFLER beschriebenen Gasentladung ausgeführt²⁾. Diese lieferte bei einer Brennspannung von 60 KV einen Ionenstrom von maximal 300 μ Amp. und ertrug einen ununterbrochenen Betrieb von höchstens 2 Stunden.

Einen Querschnitt durch die neue Gasentladung zeigt Fig. 1. Bei dieser konnte die maximale Betriebsspannung durch sorgfältige Vermeidung von Tangentialkomponenten der Feldstärke auf der Isolatoroberfläche wesentlich erhöht werden. Einwandfreies Arbeiten ist mit Spannungen bis zu 90 KV bei Entladungsströmen von 5–8 mA möglich. Der Kanalstrahl beträgt bis zu 700 μ A, davon entfallen rund 60% auf Atomionen. Durch Vervollständigung des Kühlsystems wurde ferner erreicht, dass die Betriebsdauer nun praktisch unbeschränkt ist.

III. Messtechnik.

Die in der vorliegenden Untersuchung verwendete Messtechnik entspricht genau der bereits früher beschriebenen²⁾. Die Präparate wurden in Hohlzylinderform über die Target gebracht. Ihre Wandstärke war stets mindestens gleich der maximalen Reichweite der vom Endkern emittierten Betateilchen. Die Bestrahlungsdauer der einzelnen Elemente richtete sich sowohl nach der Halbwertszeit der durch den (γ, p) -Prozess induzierten als auch der gleichzeitig durch (γ, n) -Reaktionen entstehenden Aktivitäten, im allgemeinen

*) Diese Hochspannungsanlage wurde von der Haefeli AG. in Basel erstellt, wofür ihr bestens gedankt sei.

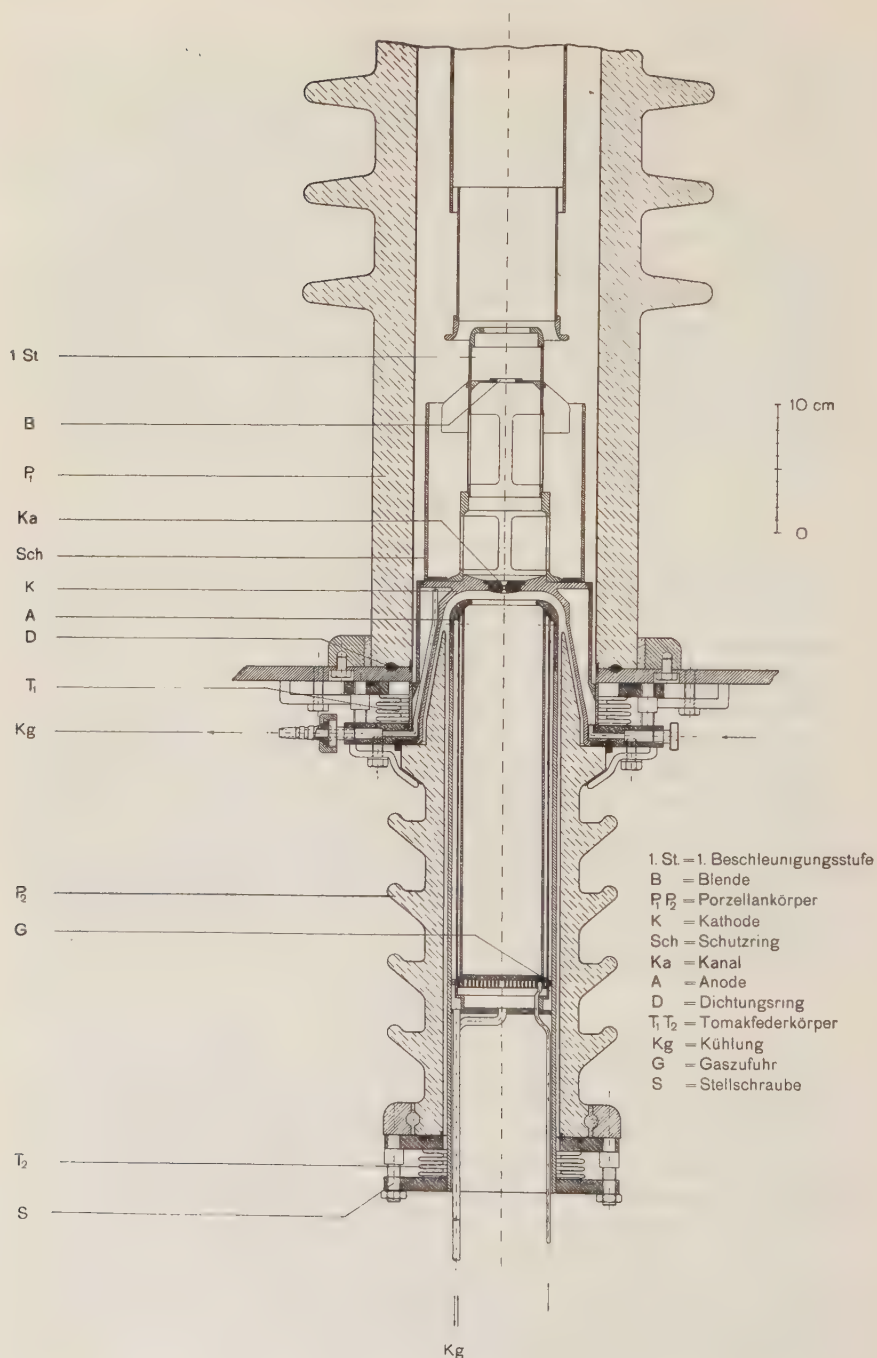


Fig. 1. Ionenquelle (Gasentladung).

betrug sie ein bis zwei Halbwertszeiten der ersteren. Zur fortlaufenden Intensitätsmessung der Lithium-Gammastrahlung diente ein kleines Zählrohr, das in 1,4 m Abstand von der Target hinter einem Bleischutz von 1 cm Dicke aufgestellt war. Bei der üblicherweise verwendeten Intensität betrug seine Stosszahl 600 Stösse pro Minute (Verstärkerapparat mit eingebautem Vierfachunter-setzer). 10 Milligramm Radium an der Stelle der Target bewirkten in diesem Zählrohr dieselbe Stosszahl.

Zur Aktivitätsmessung verwendeten wir im allgemeinen Aluminiumzählrohre von 5 cm Fadenlänge, 24 mm Innendurchmesser und 0,1 mm Wandstärke. Da die durch (γ, p) -Prozesse induzierten Aktivitäten stets sehr schwach sind (10–100 Stösse/Minute am Aktivitätszählrohr), wurde für die Messung derselben eine besondere Anordnung gebaut: Das Aktivitätszählrohr wird von 10 grossen (4 cm Durchmesser, 20 cm Länge, 1 mm Wandstärke), mit ihm in Antikoinzidenz geschalteten Messingzählrohren umgeben, welche den von der Höhenstrahlung herrührenden Teil des Nulleffekts vollständig unterdrücken. Diese Anordnung, deren Querschnitt Fig. 2a zeigt, bewirkt eine Erniedrigung des Nulleffekts um das 5- bis 6-fache (Nulleffekt ohne Antikoinzidenzzählrohre 15/min, mit denselben 2–3/min). Die Schaltung des Antikoinzidenzverstärkers zeigt Fig. 2. Durch Änderung weniger Schaltelemente kann dieser Verstärker auch als Koinzidenzverstärker verwendet werden.

IV. Auswertung der Messungen.

Als Ausbeute A einer Reaktion bezeichnen wir die auf unendlich lange Bestrahlungsdauer und eine bestimmte Normalintensität der Lithium-Gammastrahlung (400 Stösse pro Minute am Intensitätszählrohr) bezogene Anfangsaktivität des entstandenen radioaktiven Isotops:

$$A = \frac{400}{J_\gamma} \cdot \frac{\int_{t_1}^{t_2} \frac{dN}{dt} dt}{(e^{-\lambda t_1} - e^{-\lambda t_2})} \cdot \frac{\lambda}{(1 - e^{-\lambda t})} \quad (1)$$

J_γ = Gemessene Gammaintensität (Stosszahl/min)

t = Bestrahlungsdauer

t_1 = Zeit zwischen Bestrahlungsende und Messbeginn

t_2 = Zeit zwischen Bestrahlungsende und Ende der Aktivitätsmessung

Diese Ausbeuten wurden nun immer mit der Ausbeute des bekannten Kernphotoeffektes am Kupfer: $\text{Cu}^{63}(\gamma, n)\text{Cu}^{62}$ verglichen. Zu diesem Zweck bestrahlten wir Kupferhohlzylinder von genau

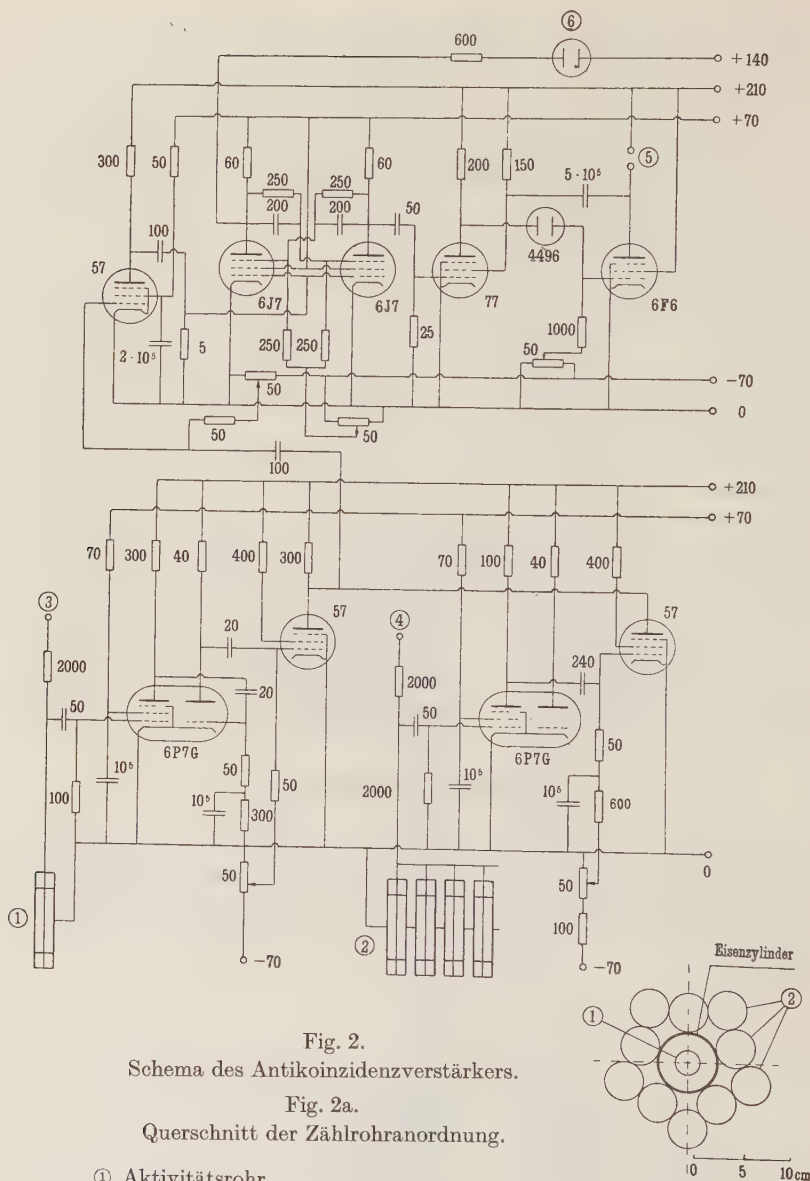


Fig. 2.
Schema des Antikoinzidenzverstärkers.

Fig. 2a.
Querschnitt der Zählrohranordnung.

- ① Aktivitätsrohr.
 - ② Zählrohre des Antikoinzidenzkrans.
 - ③ Spannung für das Aktivitätszählrohr, 1200—1400 Volt.
 - ④ Spannung für die Antikoinzidenzzählrohre, 1420 Volt.
 - ⑤ Mechanisches Zählwerk.
 - ⑥ Indikatorglimmlämpchen des eingebauten Zweifachuntersetzers.
- Widerstände in K, Ω , Kapazitäten in pF.

derselben Form und Grösse wie das betreffende Präparat und bestimmten die Ausbeute der 10-Minutenaktivität mit demselben Zählrohr.

Aus dem Verhältnis der Ausbeuten kann nun auf das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte der entsprechenden Reaktionen geschlossen werden. Die gemessene Ausbeute A hängt mit dem Wirkungsquerschnitt σ in der folgenden Weise zusammen:

$$A = c \cdot \sigma \cdot n \cdot f'(d_z) \cdot \int_0^R f(x) \cdot dx$$

$$= c \cdot \sigma \cdot n \cdot f'(d_z) \bar{R}.$$

c – Konstante, die sowohl die Raumwinkel von Bestrahlung und Registrierung als auch die Gammaintensität enthält

n – Anzahl Atome des Ausgangsisotops pro cm^3

$f(x)$ – $N(x)/N(0)$, Absorptionskurve des aktiven Endkerns im Material des Präparates

R – Maximale Reichweite der Betateilchen in der Präparatsubstanz

\bar{R} – Mittlere Reichweite

$f'(d_z)$ – Absorption durch die Zählrohrwand d_z (Aluminium).

Da nun die Absorptionskurven aller Betaspektren bei dicker Schicht des aktiven Präparates bis zu mehreren Halbwertsdicken H exponentiell verlaufen⁵⁾, so kann man für die Grössen dieser Gleichung setzen ($\mu' = \text{Absorptionskoeffizient in Aluminium}$):

$$f(x) = e^{-\mu x}, \quad f'(d_z) = e^{-\mu' d_z}, \quad \bar{R} = \frac{1}{\mu} = \frac{H}{\ln 2}.$$

Somit wird:

$$\sigma = \frac{A \cdot e^{\mu' d_z}}{c \cdot n \cdot \bar{R}}.$$

Wird das Verhältnis zweier Wirkungsquerschnitte gebildet, so fällt die unbestimmte Konstante c weg. Bedeuten M das Molekulargewicht der bestrahlten Substanz und ε die relative Häufigkeit des Ausgangsisotops*), so hat man ($L = 6 \cdot 10^{23}$, ρ – Dichte in g cm^{-3})

$$n = \frac{L \cdot \rho \cdot \varepsilon}{M}$$

Atome pro cm^3 . Setzt man die mittlere Reichweite \bar{R} und die Halbwertsdicke nicht wie bis anhin in cm , sondern in g/cm^2 ein, so erhält man:

$$\frac{\sigma_1}{\sigma_2} = \frac{A_1 \cdot M_1 \cdot \bar{R}_2 \cdot \varepsilon_2}{A_2 \cdot M_2 \cdot \bar{R}_1 \cdot \varepsilon_1} \cdot e^{(\mu'_1 - \mu'_2) d_z}.$$

⁵⁾ O. HUBER, O. LIENHARD, P. SCHERRER, H. WÄFFLER: H.P.A. XVIII, 221 (1945).

*) Die relativen Häufigkeiten sind den „Kernphysikalischen Tabellen“ von MALLAUCH und FLÜGGE entnommen.

Wird die Substanz 1 in Form einer Verbindung bestrahlt (wie z. B. Chrom in Form von Cr_2O_3), die pro Molekül η_1 Atome des untersuchten Elementes enthält, dann wird:

$$\frac{\sigma_1}{\sigma_2} = \frac{A_1 \cdot M_1 \cdot \overline{R_2} \cdot \varepsilon_2}{A_2 \cdot M_2 \cdot R_1 \cdot \varepsilon_1 \cdot \eta_1} \cdot e^{(\mu_1' - \mu_2') d_z} \\ - \frac{A_1 \cdot M_1 \cdot H_2 \cdot \varepsilon_2}{A_2 \cdot M_2 \cdot H_1 \cdot \varepsilon_1 \cdot \eta_1} \cdot e^{(\mu_1' - \mu_2') d_z} \quad (2)$$

wobei A_1 und M_1 Ausbeute und Molekulargewicht der Verbindung sind.

Für die Bestimmung des Wirkungsquerschnittsverhältnisses muss somit neben der Ausbeutemessung noch eine Absorptionsmessung zur Ermittlung der Halbwertsdicke H durchgeführt werden. Die Absorptionskoeffizienten μ' werden aus den Halbwertsdicken in Aluminium berechnet, die man der Arbeit von O. HUBER, O. LIENHARD, P. SCHERRER und H. WÄFFLER⁵⁾ entnimmt. Da nun der Massenabsorptionskoeffizient μ/ρ bzw. die Halbwertsdicke H (in g/cm^2) von der Ordnungszahl Z des Absorbers abhängt, so wurden diese Absorptionskurven nach Möglichkeit im Material des Präparates selbst oder dann in einem Nachbar-Element desselben aufgenommen.

V. Ausscheidung der Neutroneneffekte.

Die Interpretation unserer Messergebnisse erfährt eine wesentliche Komplikation durch die Tatsache, dass die in Frage stehenden (γ, p) -Reaktionen immer von einem (n, p) -Prozess, der auf denselben Endkern führt, konkurrenziert werden. Die Ausgangskerne sämtlicher (γ, p) -Prozesse besitzen nämlich ein stabiles Nachbarisotop, das ein Neutron weniger enthält als erstere (siehe z. B. Fig. 5). Will man nur nachweisen, dass die Endkerne wenigstens teilweise durch Photoeffekt entstehen, so genügt es, die Ausbeute A in Funktion der Protonenenergie aufzunehmen. Folgt A dem für die Ausbeute an Gammastrahlen charakteristischen Resonanzanstieg bei 440 KeV, so ist das Auftreten der (γ, p) -Reaktion sichergestellt. Setzt man sich jedoch die Bestimmung von Wirkungsquerschnittsverhältnissen zum Ziel, so muss der Anteil A_n der Ausbeute A bestimmt werden, der von der (n, p) -Reaktion herührt. Dieser Anteil A_n ist gegenüber der durch die Gammastrahlen induzierten Ausbeute A_γ nur im Falle des Cd^{111} so klein, dass er vernachlässigt werden kann.

Die aus der Quelle stammenden Neutronen entstehen auf zwei verschiedene Arten: 1. Die natürliche Deuteriumbeimengung des

Wasserstoffs, mit dem die Ionenquelle gespeist wird, erzeugt in der Target die bekannten $(\text{Li} + \text{D})$ -Neutronen. 2. Beim Protoneneinfang des Li^7 entstehen durch Zerfall des Be^8 zwei Alphateilchen, die beide eine Energie von 8,6 MeV besitzen. Diese Alphateilchen können in der Target die Reaktion $\text{Li}^7(\alpha, n)\text{B}^{10}$ hervorrufen. Die Maximalenergie der so entstandenen Neutronen beträgt 4,3 MeV, diejenige der $(\text{Li} + \text{D})$ -Neutronen 14,4 MeV. Die gesamte Neutronenintensität erreicht bei den üblichen Bestrahlungsbedingungen (500 KV, 600 μA) ca. 75 Millicuries ($\text{Ra} + \text{Be}$)-Äquivalent; davon entfallen rund 9 Millicuries auf die (α, n) -Reaktion. Um diese verhältnismässig grosse Neutronenintensität zu verkleinern, haben wir an fast allen untersuchten Elementen zusätzlich auch Bestrahlungen mit durch mehrfache Elektrolyse gewonnenem Wasserstoff, dessen Deuteriumgehalt wesentlich geringer ist, durchgeführt. Es zeigt sich nun, dass alle (n, p) -Reaktionen etwa im gleichen Verhältnis abnehmen. Das beweist, dass die $(\text{Li} + \alpha)$ -Neutronen in unseren Präparaten keinen messbaren Anteil an A_n erzeugen. Da nämlich in den uns interessierenden Fällen der (n, p) -Prozess stets endotherm ist, müsste ein solcher Anteil der energiearmen $(\text{Li} + \alpha)$ -Neutronen in Abhängigkeit von der Energietönung starke individuelle Schwankungen zeigen.

In Aluminium wird durch die Lithium-Gammastrahlung lediglich die 7,0 sec-Aktivität des Al^{26} induziert; aus diesem Grunde eignet sich dieses Metall sehr gut als Indikator für die $(\text{Li} + \text{D})$ -Neutronen. Wir haben deshalb gleichzeitig mit unseren Präparaten konzentrisch dazu einen Hohlzylinder aus Aluminium bestrahlt. Bei kurzzeitigen Bestrahlungen wird die durch (n, p) induzierte 10 min-Aktivität des Mg^{27} , bei längeren die durch (n, α) erzeugte 14,8 h-Aktivität des Na^{24} als Mass für die Neutronenintensität genommen. Die in unseren Präparaten durch die Neutronen induzierten Aktivitäten können dann nach den folgenden drei Methoden ausgedrückt werden:

1. A_n ist proportional dem Deuteriumgehalt des Wasserstoffs. Bestrahlt man nun ein Präparat mit Wasserstoff von verschieden hohem Deuteriumgehalt, d. h. mit gewöhnlichem (aus einer einmaligen Elektrolyse von Wasser stammendem) bzw. mit mehrmals verbranntem und unter Überspannung elektrolysiertem Wasserstoff, so erhält man verschiedene Ausbeuten: Mit gewöhnlichem Wasserstoff ist

$$A = A_\gamma + A_n,$$

mit x-mal elektrolysiertem Wasserstoff

$$A_x = A_\gamma + A_{nx}.$$

Die jeweils im Aluminium induzierten Neutronenaktivitäten geben uns das Verhältnis A_{nx}/A_n . Fig. 3 zeigt nun, wie man A_γ aus den gemessenen Grössen A , A_x und A_{nx}/A_n durch lineare Extrapolation erhält. (Der Abszissenpunkt 0 entspricht völlig deuteriumfreiem Wasserstoff.)

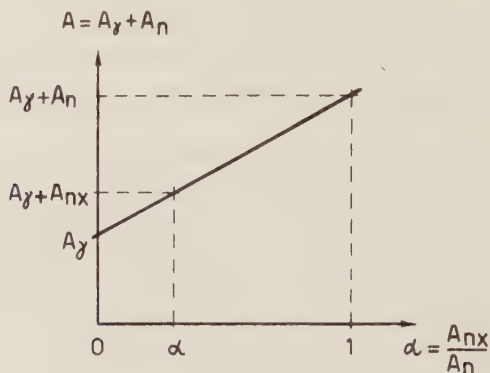


Fig. 3.

Elimination der durch Neutronen erzeugten Störaktivitäten A_n .

(Bei dreimal elektrolysiertem Wasserstoff ist $\alpha = 0,12 \pm 0,01$.)

2. Wir bestrahlen das Präparat zusammen mit dem Vergleichszylinder aus Aluminium mit (Li + D)-Neutronen*). Diese Bestrahlung liefert uns das Verhältnis

$$\left[\frac{A_n}{A_n(\text{Al})} \right]_{(\text{Li} + \text{D})}^*$$

Da wir Präparat und Aluminiumzylinder in genau derselben relativen Geometrie und mit gleicher Deuteronenenergie aktivieren, haben wir genau dieselben Verhältnisse der durch Neutronen in Präparat und Aluminium induzierten Aktivitäten. Man kann somit aus der bei Bestrahlung mit unserer Apparatur im Neutronenindikator auftretenden Aktivität $A_n(\text{Al})$ direkt auf die im Präparat erzeugte Störaktivität A_n schliessen:

$$A_n = A_n(\text{Al}) \cdot \left[\frac{A_n}{A_n(\text{Al})} \right]_{(\text{Li} + \text{D})}^*$$

Die gesuchte Ausbeute ist dann

$$A_\gamma = A - A_n.$$

*) Die Neutronenbestrahlungen wurden von Dr. BLEULER und Dr. ZÜNTI am Tensator durchgeführt, wofür wir ihnen auch an dieser Stelle bestens danken.

Dasselbe kann man auch mit den Ausbeuten der Bestrahlung mit elektrolysiertem Wasserstoff ausführen, da

$$\frac{A_n}{(A_n \text{ Al})} = \frac{A_{nx}}{A_{nx}(\text{Al})}.$$

Es ergibt sich

$$A_{nx} = A_{nx}(\text{Al}) \cdot \left[\frac{A_n}{A_n(\text{Al})} \right]_{(\text{Li} + \text{D})}$$

und

$$A_\gamma = A_x - A_{nx}.$$

3. Bei (γ, p) -Prozessen, die besonders stark von einer (n, p) -Reaktion konkurrenziert werden, haben wir noch eine weitere, vor allem als Kontrolle gedachte Bestimmung von A_n und damit von A_γ durchgeführt. Zu diesem Zweck wurden Präparat und Aluminiumzylinder a) knapp unter und b) knapp über der Resonanzstelle des Protoneinfangprozesses von Lithium bestrahlt. Die Gammaintensität steigt dabei um das 20-fache, die Neutronenintensität dagegen nur um einen Faktor 2 bis 3. Der äusserst geringe Beitrag der Gammastrahlung zur Aktivität, die im Präparat bei Bestrahlung unter Resonanz induziert wird, lässt sich näherungsweise aus einer mit der 1. oder 2. Bestimmungsart erhaltenen Ausbeute A_γ ermitteln. A_n unter der Resonanz ergibt sich durch Subtraktion dieses kleinen Beitrags von der Gesamtbeute unter der Resonanz. Es gilt nun:

$$\left[\frac{A_n}{A_n(\text{Al})} \right]_{\text{unter Res.}} = \left(\frac{A_n}{A_n(\text{Al})} \right)_{\text{über Res.}}$$

Daraus ergibt sich die durch Neutronen über der Resonanzstelle der Lithium-Gammastrahlung induzierte Ausbeute A_n :

$$A_n = A_n(\text{Al}) \cdot \left[\frac{A_n}{A_n(\text{Al})} \right]_{\text{unter Res.}}$$

In Fall 3 berücksichtigt man neben den vom Deuteriumgehalt des Wasserstoffs herrührenden auch die aus der Reaktion $\text{Li}(\alpha, n)\text{B}$ stammenden Neutronen, in den Fällen 1 und 2 dagegen nicht. Die Tatsache, dass die nach den drei angegebenen Verfahren ermittelten Ausbeuten A_γ innerhalb der Fehlergrenzen übereinstimmen, beweist wiederum, dass die (α, n) -Neutronen keinen Beitrag zu den störenden (n, p) -Umwandlungen geben.

VI. Messergebnisse.

1. Magnesium.

Am Magnesium sind zwei, auf einen radioaktiven Restkern führende (γ, p) -Prozesse möglich:

- a) $\text{Mg}^{26}(\gamma, p)\text{Na}^{25}$ (60 sec)
 b) $\text{Mg}^{25}(\gamma, p)\text{Na}^{24}$ (14,8 h).

Beide Endkerne entstehen bei der Bestrahlung mit unserer Apparatur auch durch (n, p) -Prozess.

a) Die erste Reaktion: $\text{Mg}^{26}(\gamma, p)\text{Na}^{25}$ wurde schon früher durch den Nachweis, dass sie dem Resonanzanstieg der Lithium-Gammastrahlung folgt, sichergestellt³⁾. Sie wurde in der vorliegenden Untersuchung nochmals genau ausgemessen und der Anteil A_n der Reaktion $\text{Mg}^{25}(n, p)\text{Na}^{25}$ berücksichtigt. Zu diesem Zweck führten wir 50 Magnesiumbestrahlungen durch, und zwar 25 mit gewöhnlichem und 25 mit dreimal elektrolysiertem Wasserstoff. Die Neutronenaktivitäten im Aluminium (Mg^{27}) ergaben das Verhältnis der verschiedenen Deuteriumbeimengungen oder, was gleichbedeutend ist, den Quotienten A_{nz}/A_n .

Gang der Messung: Nach zweiminütiger Bestrahlung wurde der Zerfall der induzierten Aktivität während 5 Minuten verfolgt. Die komplexe Zerfallskurve enthält die beiden Perioden 11,8 sec und 60 sec. Die erstere rührt vom Mg^{23} her, das aus Mg^{24} durch (γ, n) -Prozess entsteht. Die Ausbeuten der 60 sec-Aktivität für die zwei verschiedenen Wasserstoffarten sind:

$$A = 398 \text{ min}^{-1}, \quad A_3 = 292 \text{ min}^{-1}.$$

Die Messungen am Aluminium ergaben

$$A_{n3}/A_n = 0,125.$$

Daraus folgt, dass bei Bestrahlung mit gewöhnlichem Wasserstoff 30% der 60 sec-Aktivität durch Neutronen induziert werden. Die Ausbeute A_γ des (γ, p) -Prozesses am Mg^{26} beträgt

$$A_\gamma = 277 \text{ min}^{-1}.$$

Da die Ausbeute der (γ, n) -Reaktion an einem entsprechenden Kupferzylinder 27000 min^{-1} ist, ergibt sich für die relative Ausbeute unseres (γ, p) -Prozesses (beide Ausbeuten sind auf das Element bezogen):

$$A_{\text{rel}} = \frac{A [\text{Mg}^{26}(\gamma, p)\text{Na}^{25}]}{A [\text{Cu}^{63}(\gamma, n)\text{Cu}^{62}]} = 1,026\%.$$

Die Halbwertsdicken dieser Na^{25} -Aktivität in Aluminium und der Cu^{62} -Aktivität in Kupfer werden zu 227 mg/cm² bzw. zu 140 mg/cm² bestimmt. Damit berechnet sich der relative Wirkungsquerschnitt nach Gleichung (2) zu

$$\sigma_{\text{rel}} = \frac{\sigma[\text{Mg}^{26}(\gamma, p)\text{Na}^{25}]}{\sigma[\text{Cu}^{63}(\gamma, n)\text{Cu}^{62}]} = (1,56 \pm 0,24) \%$$

(Den hier und bei allen folgenden Resultaten angegebenen Fehler betrachten wir als Fehlergrenze.)

b) Die zweite untersuchte Reaktion $\text{Mg}^{25}(\gamma, p)\text{Na}^{24}$ ist sehr stark durch den Neutroneneffekt $\text{Mg}^{24}(n, p)\text{Na}^{24}$ gestört, da Mg^{24} etwa 7-mal häufiger ist als Mg^{25} . Die Elimination dieses Störeffektes wurde auf zwei Weisen durchgeführt: 1. Durch Verwendung von gewöhnlichem bzw. dreimal elektrolysiertem Wasserstoff und 2. durch Bestrahlung sowohl unter als auch über der Resonanzstelle der 17,2 MeV-Gammastrahlung. Beide Auswertungen lieferten gut übereinstimmende Resultate für die Ausbeute des (γ, p) -Prozesses. Der Anteil A_n beträgt 77% der Gesamtausbeute. Wir erhalten

$$A_\gamma = 118 \text{ min}^{-1}$$

und

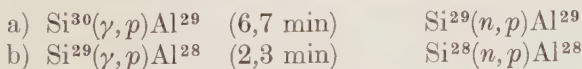
$$A_{\text{rel}} = 0,44 \%$$

Die Halbwertsdicke H der 14,8 h-Aktivität des Na^{24} in Aluminium beträgt, nach Subtraktion des Anteils der Gammastrahlung, die dem Betazerfall folgt, 62 mg/cm². Mit diesem Wert berechnet sich der Wirkungsquerschnitt der Reaktion $\text{Mg}^{25}(\gamma, p)\text{Na}^{24}$ relativ zum (γ, n) -Querschnitt am Kupfer zu

$$\sigma_{\text{rel}} = (2,83 \pm 0,30) \%$$

2. Silicium.

Beim Silicium hat man ganz ähnliche Verhältnisse wie beim Magnesium; es sind wiederum zwei (γ, p) -Prozesse möglich, die beide von einer (n, p) -Reaktion begleitet werden:



Anhand dieses kompliziertesten Falles soll nun ausführlich beschrieben werden, wie man die hier besonders stark auftretenden Neutroneneffekte mit den unter V. genannten drei Methoden quantitativ bestimmen und von den Gesamtaktivitäten in Abzug bringen kann.

1. Reines Silicium wurde 8 mal je 20 Minuten lang mit gewöhnlichem Wasserstoff bestrahlt und hierauf der Zerfall jeweils während 28 Minuten gemessen. Die in Fig. 4a wiedergegebene Zerfallskurve ist aus den zwei zu erwartenden Aktivitäten zusammengesetzt. Die in der Figur eingetragenen Fehler sind die mittleren statistischen Schwankungen. Den Messdaten entsprechen die Ausbeuten:

$$2,3 \text{ min-Periode: } A = (2365 \pm 90) \text{ min}^{-1}$$

$$6,7 \text{ min-Periode: } A = (103 \pm 12,5) \text{ min}^{-1}.$$

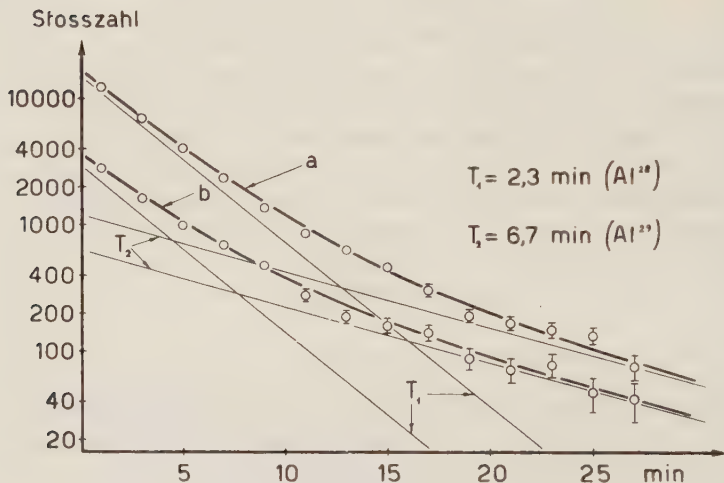


Fig. 4.

Zerfall der in Silicium induzierten Aktivitäten.

- a) Bestrahlung mit gewöhnlichem Wasserstoff.
- b) Bestrahlung mit elektrolysiertem Wasserstoff
(Messbeginn je 4 min nach Ende der Bestrahlung).

Am gleichzeitig durch die Targetneutronen aktivierten Aluminiumzylinder massen wir die 10 min-Aktivität des Mg^{27} . Ihre Ausbeute wird in gleicher Weise berechnet wie diejenige von Aktivitäten, welche durch Gammaquanten induziert werden, da die Neutronenzahl bei gleicher Protonenenergie und gleichem Deuteriumgehalt des Wasserstoffs proportional ist zur Gammaintensität; der Standardintensität von 400 Stößen am Gammazählrohr entspricht eine bestimmte Neutronenstandardintensität, zu welcher wiederum eine bestimmte Ausbeute der Reaktion $\text{Al}^{27}(n, p)\text{Mg}^{27}$ gehört, nämlich:

$$A_n(\text{Al}) = (300 \pm 15) \text{ min}^{-1}.$$

Hierauf wurden Silicium und Aluminium 8 mal je 20 Minuten lang mit dreimal elektrolysiertem Wasserstoff bestrahlt (Fig. 4b). Die gemessenen Ausbeuten sind:

$$2,3 \text{ min-Periode: } A_3 = (462 \pm 22) \text{ min}^{-1}$$

$$6,7 \text{ min-Periode: } A_3 = (54 \pm 8) \text{ min}^{-1}$$

$$\text{Aluminium: } A_{n3}(\text{Al}) = (33,5 \pm 4) \text{ min}^{-1}.$$

Die Extrapolation auf den Deuteriumgehalt Null liefert uns die ersten Werte der Ausbeuten der (γ, p) -Reaktionen an den Isotopen Si^{29} und Si^{30} .

$$2,3 \text{ min-Periode: } A_\gamma = (223 \pm 82) \text{ min}^{-1}$$

$$6,7 \text{ min-Periode: } A_\gamma = (47,8 \pm 12) \text{ min}^{-1}. \quad (\text{A})$$

2. Als nächstes bestrahlten wir Silicium- und Aluminiumzylinder mit $(\text{Li} + \text{D})$ -Neutronen. Die Auswertung dieser Messung ergibt die Verhältnisse der Neutronenstöraktivitäten zur Neutronenaktivität im Aluminium.

$$2,3 \text{ min-Periode: } \left[\frac{A_n}{A_n(\text{Al})} \right]_{(\text{Li}+\text{D})} = 7,5 \pm 0,7$$

$$6,7 \text{ min-Periode: } \left[\frac{A_n}{A_n(\text{Al})} \right]_{(\text{Li}+\text{D})} = 0,15 \pm 0,05.$$

Mit diesen Quotienten berechnen sich die Neutronenteile A_n der Ausbeuten, die wir bei Bestrahlung mit gewöhnlichem Wasserstoff erhalten haben:

$$\begin{aligned} 2,3 \text{ min-Periode: } A_n &= A_n(\text{Al}) \cdot \left[\frac{A_n}{A_n(\text{Al})} \right]_{(\text{Li}+\text{D})} \\ &= 300 \cdot 7,5 = (2250 \pm 322) \text{ min}^{-1} \end{aligned}$$

$$6,7 \text{ min-Periode: } A_n = (45 \pm 16) \text{ min}^{-1}.$$

Subtrahiert man diese Ausbeuten von den Gesamtausbeuten, so zeigt sich, wie man aus den Fehlergrenzen sieht, dass der so erhaltene Wert für die 2,3 min-Aktivität nicht brauchbar ist.

$$2,3 \text{ min-Periode: } A_\gamma = (115 \pm 412) \text{ min}^{-1}$$

$$6,7 \text{ min-Periode: } A_\gamma = (58 \pm 28) \text{ min}^{-1}.$$

Es ist deshalb zweckmässig, die Neutronenbestrahlung mit den Ausbeuten A_3 zu vergleichen. Die gesuchten A_γ werden dann:

$$A_\gamma = A_3 - A_{n3}(\text{Al}) \cdot \left[\frac{A_n}{A_n(\text{Al})} \right]_{(\text{Li}+\text{D})}.$$

Man erhält:

$$2,3 \text{ min-Periode: } A_\gamma = (211 \pm 76) \text{ min}^{-1}$$

$$6,7 \text{ min-Periode: } A_\gamma = (49,0 \pm 10,2) \text{ min}^{-1} \quad (\text{B})$$

3. Des weiteren bestrahlten wir Präparat und Aluminiumzylinder bei einer Spannung von ca. 400 KV. Die vom Lithium eingefangenen Protonen haben jetzt eine Energie, welche unter der Resonanzschwelle der Gammastrahlung (440 KV) liegt. Die Target emittiert somit fast ausschliesslich Neutronen. Die Aktivität des Al^{29} ist unter diesen Bedingungen kaum mehr messbar, da sie zu schwach ist; wir beschränken uns deshalb auf den 2,3 min-Körper. Der nun sehr schwache Anteil der (γ, p) -Reaktion wird näherungsweise aus den schon berechneten Werten von A_γ (A und B) ermittelt. Das Verhältnis der durch die Targetneutronen im Präparat und im Aluminium induzierten Ausbeuten ist:

$$2,3 \text{ min-Periode: } \left[\frac{A_n}{A_n(\text{Al})} \right]_{\text{unter Res.}} = 7,0 \pm 1,15.$$

Man bestimmt auf bekannte Weise A_{n3} (durch Multiplikation dieses Wertes mit $A_{n3}(\text{Al})$) und zieht diesen Neutronenanteil sodann von A_3 ab. Es ergibt sich:

$$2,3 \text{ min-Periode: } A_\gamma = (228 \pm 84) \text{ min}^{-1}. \quad (\text{C})$$

Die nach den drei Methoden erhaltenen Ergebnisse für A_γ (A, B und C) werden nun gemittelt, indem man jedem einzelnen Wert ein dem angegebenen Maximalfehler entsprechendes Gewicht gibt. Man berechnet so die folgenden Mittelwerte:

$$2,3 \text{ min-Periode: } A_\gamma = (220 \pm 70) \text{ min}^{-1}$$

$$6,7 \text{ min-Periode: } A_\gamma = (48,4 \pm 10) \text{ min}^{-1}.$$

Die Ausbeute des Kernphotoeffektes am Cu^{63} beträgt mit einem unserem Siliciumpräparat genau entsprechenden Kupferzylinder 26860 min^{-1} . Die relativen Ausbeuten werden somit:

$$2,3 \text{ min-Periode: } A_{\text{rel}} = (0,82 \pm 0,28) \%$$

$$6,7 \text{ min-Periode: } A_{\text{rel}} = (0,180 \pm 0,040) \%.$$

Die Halbwertsdicken dieser Betastrahler in Aluminium sind 166 mg/cm^2 bzw. 152 mg/cm^2 . Damit bestimmen sich die relativen Wirkungsquerschnitte nach Gleichung (2):

$$\text{Si}^{29}(\gamma, p)\text{Al}^{28}: \sigma_{\text{rel}} = (3,45 \pm 1,35) \%$$

$$\text{Si}^{30}(\gamma, p)\text{Al}^{29}: \sigma_{\text{rel}} = (1,26 \pm 0,32) \%$$

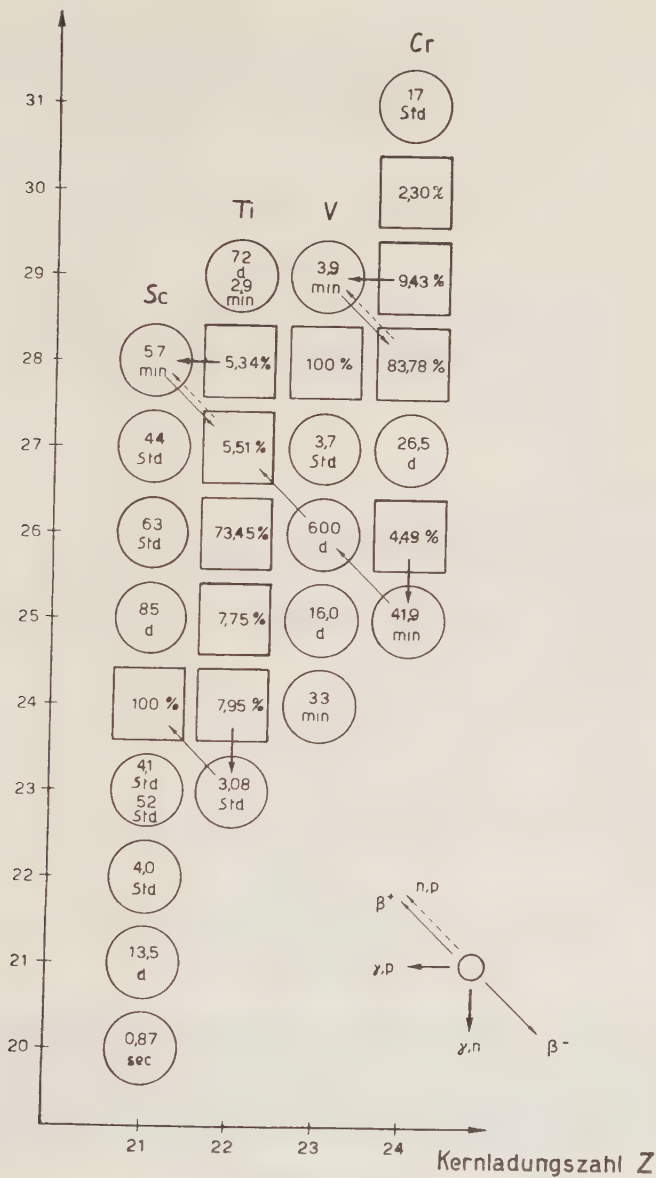
Neutronenzahl N 

Fig. 5.

Isotopentafel der Elemente Scandium bis Chrom.

(Bei den stabilen Isotopen sind die prozentualen Häufigkeiten, bei den radioaktiven die Halbwertszeiten angegeben.)

3. Titan.

Beim Titan können mehrere Photoeffekte unter Emission eines Protons auftreten (Fig. 5). Wir beschränken uns auf denjenigen, dessen Nachweis am bequemsten und sichersten ist, den Prozess $\text{Ti}^{50}(\gamma, p)\text{Sc}^{49}$. Die Halbwertszeit des Endkerns wurde von WALKE⁶⁾ zu 57 min angegeben.

Titan wurde in Form von Titandioxyd 5mal mit gewöhnlichem und 5mal mit elektrolysiertem Wasserstoff je eine Stunde lang bestrahlt. Die Dauer der Bestrahlung durfte nicht grösser gewählt werden, da sonst die schwach auftretende 57 min-Periode vollständig von der relativ starken 3,08 h-Aktivität des Ti^{45} , das durch (γ, n) -Prozess aus Ti^{46} entsteht, verdeckt würde. Fig. 6 zeigt die Zusammenfassung aller Messungen.

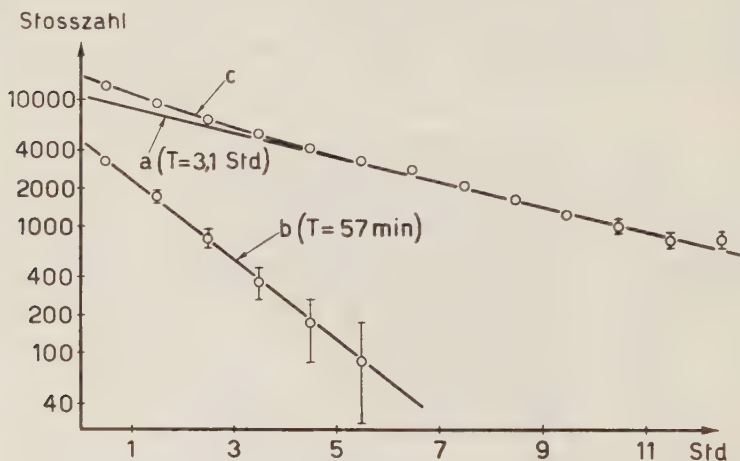


Fig. 6.

Kernphotoeffekte an Titan.

- a) $\text{Ti}^{46}(\gamma, n)\text{Ti}^{45}$ ($T = 3,08$ Std., Literaturwert).
- b) $\text{Ti}^{50}(\gamma, p)\text{Sc}^{49}$ ($T = 57$ min).
- c) $\text{Ti}^{45} + \text{Sc}^{49}$.

Zur genauen Ermittlung der Grösse des Neutroneneffektes $\text{Ti}^{49}(n, p)\text{Sc}^{49}$ wurde das Titanoxyd auch mit $(\text{Li} + \text{D})$ -Neutronen bestrahlt. Dieser Konkurrenzprozess liefert einen Beitrag von 17% zur Gesamtaktivität. Nach Abzug dieses Anteils erhält man:

$$A_{\gamma} = 15,4 \text{ min}^{-1}$$

und

$$A_{\text{rel}} = 0,057\%.$$

⁶⁾ H. WALKE: Phys. Rev. **57**, 163 (1940).

Die mittlere Kernladungszahl der Atome der Präparatsubstanz ist ~ 13 . Als Absorbermaterial zur Bestimmung der Selbstabsorption kommt somit Aluminium, das diese Kernladungszahl besitzt, in Frage. Die Energie des Sc^{49} ist bekannt; sie wurde von WÄLFLE zu 1,8 MeV angegeben⁶). Die zugehörige Halbwertsdicke wird der Eichkurve von HUBER, LIENHARD, SCHERRER u. WÄLFLE⁵) entnommen; sie beträgt 95 mg/cm^2 . Damit ergibt sich

$$\sigma_{\text{rel}} = (1,62 \pm 0,49) \%.$$

4. Chrom.

Aus Fig. 5 ersieht man, dass zwei (γ, p) -Reaktionen auf bekannte radioaktive Endkerne führen. Der 600 d-Körper kann jedoch nicht nachgewiesen werden, da die Halbwertszeit zu gross ist. Wir beschränken uns deshalb auf die Reaktion $\text{Cr}^{53}(\gamma, p)\text{V}^{52}$. Die Halbwertszeit des V^{52} (Vanadium) beträgt nach WÄLFLE⁷) 3,9 min.

Chrom wurde in Form von gepresstem Cr_2O_3 insgesamt 20 mal je 8 Minuten lang bestrahlt, und zwar 1. mit gewöhnlichem Wasserstoff und 2. mit dreimal elektrolysiertem Wasserstoff. Dazu wurden noch zwei Bestrahlungen mit $(\text{Li} + \text{D})$ -Neutronen durchgeführt. Die 3,9 min-Aktivität tritt immer auf. Nach Abzug der Anteile des 41,9 min- Cr^{49} und des sehr schwach auftretenden O^{15} (2 min), welches durch Kernphotoeffekt aus O^{16} entsteht, erhält man durch Mittelung der Ergebnisse der verschiedenen Auswertungen, die unter sich innerhalb der mittleren Fehler übereinstimmen, die folgende Ausbeute des (γ, p) -Prozesses am Cr^{53} :

$$A_{\gamma} = 192 \text{ min}^{-1}.$$

Für die auf das Element bezogene Ausbeute ergibt sich daraus

$$A_{\gamma} = 280 \text{ min}^{-1}.$$

Die relative Ausbeute wird

$$A_{\text{rel}} = 0,95 \%.$$

Der in diesem Wert bereits abgezogene Anteil A_n der Reaktion $\text{Cr}^{52}(n, p)\text{V}^{52}$ beträgt 36% der Gesamtaktivität A . Die Halbwertsdicke erhält man, wie im Falle des Titans, aus der Eichkurve⁵). Mit dem Wert von 110 mg/cm^2 Al für die bekannte Betaenergie des V^{52} (1,98 MeV⁸)) ergibt sich

$$\sigma_{\text{rel}} = (8,1 \pm 1,6) \%.$$

⁷) H. WÄLFLE: Phys. Rev. **52**, 777 (1937).

⁸) N. N. GADSINSKI, I. A. GOLOTZWAN, A. I. DANILENKO: J. exper. theor. Physik **10**, 1 (1940).

5. Selen.

Beim Selen führt lediglich der (γ, p) -Prozess am Isotop Se^{77} auf einen bekannten aktiven Restkern, nämlich As^{76} ; dieser kann auch durch den Konkurrenzprozess $\text{Se}^{76} (n, p) \text{As}^{76}$ entstehen. As^{76} zerfällt dual in Ge^{76} und Se^{76} mit der Halbwertszeit $26,75 \text{ h}^9$), wobei Positronen- und Elektronenspektrum komplex sind; dazu treten noch Gammalinien auf¹⁰⁾.

Selen wurde dreimal je 20 Stunden und einmal 40 Stunden lang bestrahlt. Die jeweils aufgenommenen Zerfallskurven zeigen genau die erwartete Neigung. Der sowohl durch eine Bestrahlung mit elektrolysiertem Wasserstoff als auch durch Bestrahlungen mit $(\text{Li} + \text{D})$ -Neutronen bestimmte Anteil der erwähnten Neutronenreaktion beträgt $9,5\%$ der Totalausbeute. Nach Abzug dieses Störeffekts erhält man für die Ausbeute der Reaktion $\text{Se}^{77}(\gamma, p) \text{As}^{76}$:

$$A_\gamma = 55,1 \text{ min}^{-1}$$

und

$$A_{\text{rel}} = 0,37\%.$$

Da das Betaspektrum komplex ist, lässt sich die mittlere Reichweite nur aus der vollständigen Absorptionskurve $f(x)$ der Beta-Teilchen bestimmen (Anteil der Gammastrahlung abgezogen) durch Bildung des Integrals

$$\bar{R} = \int_0^{R_{\text{max}}} f(x) \cdot dx.$$

Der Wert des Integrals wurde graphisch ermittelt. Zur Aufnahme der Absorptionskurve wurde As^{76} durch Neutroneneinfang aus As^{75} gebildet, da dieser Prozess bedeutend stärkere Aktivitäten liefert. Als Absorbersubstanz benützten wir Kupfer. Anstelle der Halbwertsdicke hat man nun in Gleichung (2) $\bar{R} \cdot \ln 2$ einzusetzen. Mit dem Wert 114 mg/cm^2 für $\bar{R} \cdot \ln 2$ wird

$$\sigma_{\text{rel}} = (4,8 \pm 1,4) \%.$$

6. Cadmium.

Durch (γ, p) -Reaktionen können in Cadmium die drei bekannten Silberaktivitäten Ag^{110} (24 sec), Ag^{112} (3,2 h) und Ag^{111} (7,5 d) induziert werden.

⁹⁾ G. L. WEIL, W. H. BARKAS: Phys. Rev. **56**, 485 (1939).

¹⁰⁾ A. C. G. MITCHELL, L. M. LANGER, P. W. MCDANIEL: Phys. Rev. **57**, 1107 (1940).

a) Die 24 sec-Periode.

Da es sich hier um den ersten an einem schweren Kern gefundenen (γ, p)-Prozess handelt, so haben wir uns in diesem Fall bei der Zuordnung des Endkerns nicht nur auf die Halbwertszeitbestimmung beschränkt, sondern ausserdem durch eine Absorptionsmessung die Identität der mit Gammastrahlen in Cadmium induzierten Aktivität mit der durch langsame Neutronen in Silber erzeugten 24 sec-Periode sichergestellt.

Diese dem Ag^{110} angehörige Aktivität wurde zunächst durch Neutroneneinfang in Silber hergestellt. Mit den so erhaltenen intensiven Präparaten wurden Zerfalls- und Absorptionskurve in Silber selbst aufgenommen.

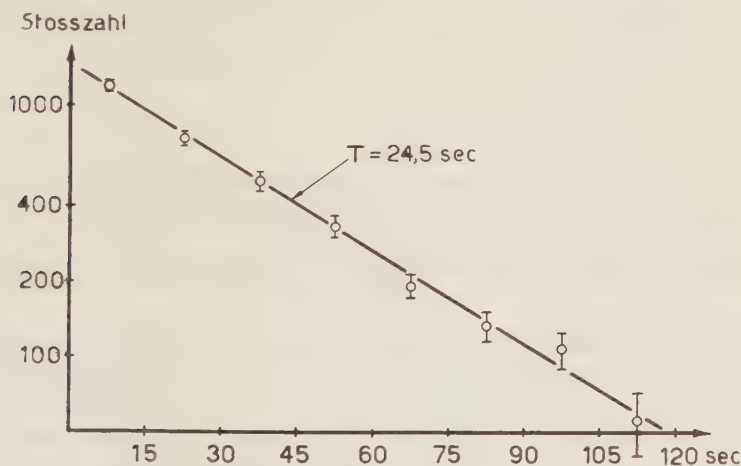


Fig. 7.

Zerfallskurve der 24 sec-Silberaktivität.

Ausgezogene Kurve: Zerfallskurve der durch Neutroneneinfang in Silber erzeugten Aktivität.

Eingezeichnete Punkte: Abfall der mit Gammastrahlen in Cadmium erzeugten Aktivität.

Hierauf wurden Zylinder aus Cd-Blech ca. 200 mal je eine Minute lang mit unserer Apparatur bestrahlt und von der so induzierten Aktivität wieder der Zerfall und die Absorption in Silber gemessen. In Fig. 7 sind die Punkte der Zerfallskurve eingetragen, die senkrechten Striche bedeuten den mittleren Fehler. Die in der Figur eingezeichnete Gerade ist die passend parallel verschobene Zerfallskurve der durch Neutroneneinfang in Silber induzierten Aktivität. In Fig. 8 ist dasselbe mit der Absorptionskurve durchgeführt;

wiederum sind die eingetragenen Punkte die Absorptionsverhältnisse der in Cadmium durch die Gammaquanten erzeugten Aktivität, die Kurve jedoch die genaue Absorptionskurve (-gerade) des in Silber durch (n, γ) -Prozess entstandenen 24 sec-Kerns. Es erweisen sich somit sowohl Zerfalls- als auch Absorptionskurve als praktisch identisch, womit die Identität der Aktivitäten sichergestellt ist.

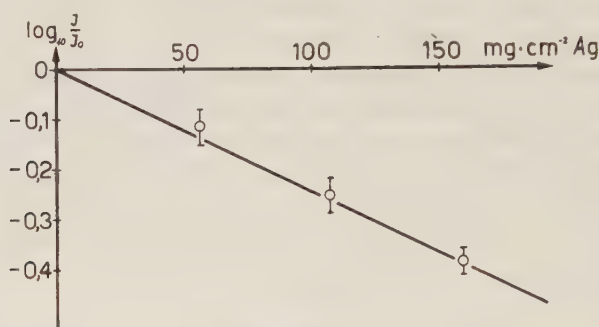


Fig. 8.

Absorptionskurve der 24-sec-Silberaktivität.

Ausgezogene Kurve: Absorptionskurve der durch Neutroneneinfang in Silber erzeugten Aktivität.

Eingezeichnete Punkte: Absorptionspunkte der mit Gammastrahlen in Cadmium erzeugten Aktivität.

Es ist nun noch nachzuweisen, dass dieser 24 sec-Körper wenigstens zum Teil aus dem Cd^{111} durch Kernphotoeffekt und nicht durch (n, p) -Prozess aus Cd^{110} entsteht. Zu diesem Zweck wurde die Ausbeute als Funktion der Ionenenergie aufgenommen; es zeigte sich dabei, dass sie genau dem Resonanzanstieg der Lithium-Gammastrahlung folgt. Dies bedeutet, dass die Aktivität sicher zum grössten Teil durch die Gammastrahlung verursacht wird. Die quantitative Bestimmung des Anteils A_n der Reaktion $\text{Cd}^{110}(n, p)\text{Ag}^{110}$ erfolgte durch Bestrahlung von Cadmium (zusammen mit Aluminium) mit $(\text{Li} + \text{D})$ -Neutronen. A_n beträgt ungefähr 2% der Gesamtaktivität.

$$A_\gamma = 117 \text{ min}^{-1},$$

$$A_{\text{rel}} = 0,40 \, \%. \quad .$$

Der Absorptionskurve wird eine Halbwertsdicke von 122 mg/cm^2 Ag entnommen. Mit diesem Wert ergibt sich ein relativer Wirkungsquerschnitt von

$$\sigma_{\text{rel}} = (4,4 \pm 0,5) \, \%. \quad .$$

b) Die 3,2 h-Periode.

Bei ein- bis mehrstündiger Bestrahlung von Cadmium wird auch diese Aktivität gefunden. Sie lässt sich jedoch nur ungenau ausmessen, da sie von zwei durch (γ, n) -Prozess induzierten Cadmiumaktivitäten von 53 min und 54 h Halbwertszeit, die beide relativ stark sind, verdeckt wird. Zur Bestimmung der Halbwertszeit wurde deshalb nach der Bestrahlung Silber chemisch abgetrennt. Dies geschieht folgendermassen: Das bestrahlte Cadmiumblech wird in konzentrierter Salpetersäure aufgelöst; nun fügt man etwas Silber in Form von AgNO_3 als Trägersubstanz zu, hierauf wird durch Zugabe von Salzsäure das Silber als Silberchlorid ausgefällt. Der Niederschlag erwies sich als aktiv; die Zerfallskurve ist in Fig. 9 dargestellt. Die Halbwertszeit stimmt innerhalb des wahrscheinlichen Fehlers mit derjenigen des Ag^{112} überein.

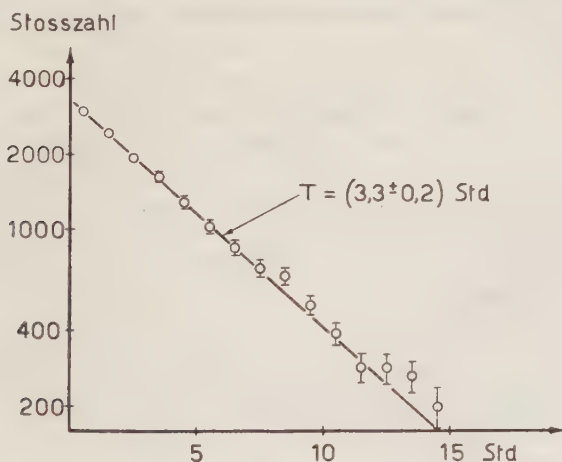


Fig. 9.

Aktivität des Silberniederschlags: Ag^{112} ($T = 3,2$ h)
(Bestrahlungsdauer 3 h).

Für die Ausbeutebestimmung wurden ausschliesslich die Messungen an metallischem Cd verwendet. Der Anteil der durch die Reaktion $\text{Cd}^{112}(n, p)\text{Ag}^{112}$ induzierten Ausbeute A_n an der Gesamtausbeute beträgt 18%. Er wurde sowohl durch Bestrahlung mit elektrolysiertem Wasserstoff als auch durch gleichzeitige Bestrahlung von Cd und Al mit $(\text{Li} + \text{D})$ -Neutronen ermittelt. Für die Ausbeute der Reaktion $\text{Cd}^{113}(\gamma, p)\text{Ag}^{112}$ ergibt sich:

$$A_\gamma = 109 \text{ min}^{-1}$$

und

$$A_{\text{rel}} = 0,375\%.$$

Die Halbwertsdicke dieses Betastrahlers ist $95 \text{ mg/cm}^2 \text{ Ag}$. Damit berechnet sich der relative Wirkungsquerschnitt:

$$\sigma_{\text{rel}} = (6,0 \pm 1,8) \%.$$

3. Die 7,5 *d*-Periode.

Um diese Silberaktivität nachzuweisen, wurde Cadmium in Blechform 5mal je 50 bis 60 Stunden lang bestrahlt und die Zerfallskurve jeweils während zwei Monaten verfolgt. Es treten zwei längere Perioden auf, eine von 54 Stunden und eine schwache von 7—8 Tagen Halbwertszeit. Die erstere ist dem Cd^{115} zugeordnet, dieses entsteht durch (γ, n) -Prozess aus Cd^{116} . Es liegt nahe, die zweite Aktivität als identisch mit der gesuchten anzusehen. Um dies sicherzustellen, trennten wir aus einem bestrahlten Cadmiumblech Silber chemisch auf dieselbe Weise wie bei der 3,2 h-Periode ab; dabei wurde diese Aktivität tatsächlich auf dem Silberniederschlag gefunden.

Da die 7,5 *d*-Periode nur sehr schwach auftritt, die 54 *h*-Periode deshalb stark überwiegt, kann die Ausbeute nur annähernd angegeben werden. Der Anteil der Neutronenreaktion $\text{Cd}^{111}(n, p)\text{Ag}^{111}$ wird durch Bestrahlung mit $(\text{Li} + \text{D})$ -Neutronen ermittelt; er beträgt 12% der Gesamtausbeute. Darin ist ein eventuell vorhandener Beitrag der Reaktion $\text{Cd}^{106}(n, p)\text{Ag}^{106*}$, dessen Endprodukt 8,2 Tage Halbwertszeit hat, also vom Ag^{111} nicht zu unterscheiden wäre, mitinbegriffen.

Die Energie der Betateilchen von Ag^{111} ist gering ($0,8 \text{ MeV}^{11}$); das bestrahlte Cd-Blech wurde deshalb ins Innere eines Eisenzählrohrs gebracht und direkt als Kathode benützt, um auf diese Weise den Intensitätsverlust durch Absorption in der Zählrohrwand zu vermeiden.

Die Ausbeute der Reaktion $\text{Cd}^{112}(\gamma, p)\text{Ag}^{111}$ beträgt:

$$A_{\gamma} = 51 \text{ min}^{-1}.$$

Um die relative Ausbeute zu bestimmen, wurde ein aktivierter Kupferzylinder gleicher Form und Grösse an die Stelle des Cd-Blechtes in das Zählrohr gebracht und dessen Ausbeute gemessen ($A_{\text{Cu}} = 32000 \text{ min}^{-1}$). Die relative Ausbeute wird:

$$A_{\text{rel}} = 0,16 \%.$$

Eine Absorptionsmessung liess sich infolge der Schwäche der aktiven Präparate nicht durchführen; die der Energie $0,8 \text{ MeV}$

¹¹⁾ H. J. BORN, W. SEELMANN-EGGEBERT: Naturwiss. **31**, 201 (1943).

entsprechende Selbstabsorption musste deshalb abgeschätzt werden. Dies geschah mit Hilfe der Absorptionskurven von Aktivitäten ungefähr gleicher Energie (F^{18} : $E_\beta = 0,7$ MeV, Zn^{69} : $E_\beta = 1,0$ MeV). Wir bestimmten die Halbwertsdicke zu $21,5 \text{ mg/cm}^2$ Ag. Damit wird:

$$\sigma_{\text{rel}} = (5,3 \pm 2,5) \%.$$

7. Molybdän.

Beim Molybdän erschien uns die Suche nach der Reaktion $^{98}_{42}\text{Mo}(\gamma, p)^{97}_{41}\text{Nb}$ (75 Minuten Halbwertszeit¹²)) erfolgversprechend. Tatsächlich ist es uns gelungen, nach zweistündiger Bestrahlung diese Aktivität nachzuweisen. Es ist

$$A_\gamma = 43 \text{ min}^{-1} \text{ und } A_{\text{rel}} = 0,20 \%.$$

(Der kleine Anteil des (n, p) -Prozesses ist in diesem Wert bereits abgezogen.) Die Halbwertsdicke wurde zu 41 mg/cm^2 bestimmt. Man erhält den Wirkungsquerschnitt

$$\sigma_{\text{rel}} = (3,5 \pm 1,0) \%.$$

8. Palladium.

Durch (γ, p) -Reaktionen können in Palladium die beiden bekannten Aktivitäten des Rh^{104} induziert werden. Nach 10-minütiger Bestrahlung konnten wir sowohl die 44 sec-Periode des Grundzustandes als auch die 4,2 min-Periode des Isomers nachweisen. Die Ausbeuten betragen (nach Abzug der Anteile A_n der störenden (n, p) -Reaktionen)

$$\begin{aligned} A_\gamma (44 \text{ sec}) &= 159 \text{ min}^{-1} \\ A_\gamma (4,2 \text{ min}) &= 49 \text{ min}^{-1}. \end{aligned}$$

Die relativen Ausbeuten werden:

$$\begin{aligned} A_{\text{rel}} (44 \text{ sec}) &= 0,74 \% \\ A_{\text{rel}} (4,2 \text{ min}) &= 0,23 \%. \end{aligned}$$

Die entsprechenden Wirkungsquerschnitte berechnen sich unter Berücksichtigung der Tatsache, dass das 4,2 min-Isomer schon während der Bestrahlung zum Teil in den Grundzustand übergeht zu

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{rel}} (44 \text{ sec}) &= (5,9 \pm 0,8) \% \\ \sigma_{\text{rel}} (4,2 \text{ min}) &= (1,4 \pm 0,4) \%. \end{aligned}$$

Der Gesamtquerschnitt der Reaktion $\text{Pd}^{105}(\gamma, p)\text{Rh}^{104}$ setzt sich additiv aus diesen beiden Querschnitten zusammen:

$$\sigma_{\text{rel}} = (7,3 \pm 1,2) \%.$$

¹²) J. M. SIEGEL: Journ. of Am. Chem. Soc. **68**, 241 (1946).

9. Zinn.

Beim Zinn führen die folgenden (γ, p) -Reaktionen auf einen aktiven Endkern:

- a) $\text{Sn}^{118}(\gamma, p)\text{In}^{117}$ (117 min)
- b) $\text{Sn}^{117}(\gamma, p)\text{In}^{116}$ (13 sec)
- c) $\text{Sn}^{117}(\gamma, p)\text{In}^{116*}$ (56,8 min) (Isomerer Endkern)
- d) $\text{Sn}^{112}(\gamma, p)\text{In}^{111}$ (23,0 min).

Die Aktivitäten der Reaktionsprodukte c) und d) können nicht nachgewiesen werden, da sie durch die 40 min-Aktivität des aus dem (γ, n) -Prozess an Sn^{124} hervorgehenden Sn^{123} vollständig verdeckt werden. Die Ausbeuten der Reaktionen a) und b) betragen (nach Abzug von A_n):

- a) $A_\gamma = 20 \text{ min}^{-1}$, $A_{\text{rel}} = 0,09\%$
- b) $A_\gamma = 45 \text{ min}^{-1}$, $A_{\text{rel}} = 0,19\%$.

Es berechnen sich daraus die folgenden Wirkungsquerschnitte:

- a) $\sigma_{\text{rel}} = (1,5 \pm 0,4)\%$
- b) $\sigma_{\text{rel}} = (2,9 \pm 0,7)\%$.

Da In^{116} einen isomeren Zustand (Halbwertszeit 56,8 Min.) besitzt, setzt sich der Gesamtquerschnitt der Reaktion $\text{Sn}^{117}(\gamma, p)\text{In}^{116}$ zusammen aus den Querschnitten der Prozesse b) und c). Das angegebene Querschnittsverhältnis von 2,9% ist somit eine untere Grenze für dasjenige des Gesamtprozesses $\text{Sn}^{117}(\gamma, p)\text{In}^{116}$.

VII. Zusammenfassung und Diskussion.

In Tabelle 1 sind die gefundenen Kernreaktionen zusammengestellt. Man erkennt, dass alle Wirkungsquerschnitte dieselbe Größenordnung haben. Die der zunehmenden Kernladung entsprechende Vergrößerung des Potentialwalles, der die Protonen am Austritt aus dem Kern behindert, wird somit bis $Z \sim 48$ kompensiert durch eine gleichzeitig erfolgende Zunahme des Einfangquerschnitts des Gammaquants. Da die Emission eines Neutrons durch den Zwischenkern für alle Kerne, ausser den leichten, weitaus wahrscheinlicher ist als die Emission eines Protons, Alphateilchens oder Gammaquants, so kann man den Wirkungsquerschnitt des (γ, n) -Prozesses an einem Kern als Absorptionsquerschnitt für die Lithium-Gammaquanten auffassen. Dieser

nimmt von Magnesium bis Cadmium etwa um einen Faktor 30 zu, ungefähr um denselben Faktor sinkt deshalb die Emissionswahrscheinlichkeit eines Protons in diesem Bereich.

Tabelle 1.

Wirkungsquerschnitte der (γ, p) -Reaktionen relativ zum Wirkungsquerschnitt des (γ, n) -Prozesses an Cu^{63} .

Ausgangskern	aktiver Endkern	Halbwertszeit	σ_{rel}
Mg^{25}	Na^{24}	14,8 h	2,83%
Mg^{26}	Na^{25}	60 sec	1,56%
Si^{29}	Al^{28}	2,3 min	3,45%
Si^{30}	Al^{29}	6,7 min	1,26%
Ti^{50}	Sc^{49}	57 min	1,62%
Cr^{53}	V^{52}	3,9 min	8,1 %
Se^{77}	As^{76}	26,75 h	4,8 %
Mo^{98}	Nb^{97}	75 min	3,5 %
Pd^{105}	Rh^{104}	$\left\{ \begin{array}{l} 44 \text{ sec} \\ 4,2 \text{ min} \end{array} \right\}$	7,3 %
Cd^{111}	Ag^{110}	24,5 sec	4,4 %
Cd^{112}	Ag^{111}	7,5 d	5,3 %
Cd^{113}	Ag^{112}	3,2 h	6,0 %
Sn^{117}	In^{116}	13 sec	2,9 %
Sn^{118}	In^{117}	117 min	1,5 %

BOHR¹³⁾ hat folgende allgemein gültige Vorstellung von einer Kernreaktion $A(a, b)B$ entwickelt: Ein Geschoss a trifft den Kern A ; dringt es ein, so entsteht ein angeregter Zwischenkern. Dabei verteilen sich die kinetische Energie ϵ_a des Geschosses sowie dessen frei werdende Bindungsenergie E_a sofort auf die verschiedenen, im Kern enthaltenen Nukleonen. Konzentriert sich von der Anregungsenergie $\epsilon_a + E_a$ zufällig einmal ein genügend grosser Teil auf ein einzelnes Teilchen b , so kann dieses den Kern verlassen. Eine solche Teilchenemission geschieht jedoch erst eine gewisse Zeit nach dem Geschosseinfang; in der Zwischenzeit, der Lebensdauer des Zwischenkerns, hat sich die Anregungsenergie sehr oft neu unter den Kernbestandteilen verteilt. Der Emissionsvorgang ist deshalb gänzlich unabhängig von der Art, wie der Zwischenkern entstanden ist. Diese Vorstellung gilt einzig dann nicht, wenn das emittierte Teilchen ein gleiches ist wie das Geschoss, und wenn es dazu noch dieselbe Energie besitzt wie dieses, d. h. wenn $a = b$ und $\epsilon_a = \epsilon_b$; man spricht dann von elastischer Streuung. In diesem

¹³⁾ N. BOHR: Nature **137**, 344 (1936).

Falle ist die vom Kern auslaufende, dem Teilchen b zugeschriebene Kugelwelle phasengleich (kohärent) mit der Welle des Geschosses, also von dieser abhängig.

Auf Grund dieses Mechanismus haben WEISSKOPF und EWING¹⁴⁾ Wirkungsquerschnitte für Kernreaktionen mit mittelschweren Kernen ($A > 50$) berechnet. Diese lassen sich darstellen als Produkt dreier Faktoren:

$$\sigma(a, b) = S_a \cdot \xi_a \cdot \eta_b.$$

S_a	Wahrscheinlichkeit, dass a die Kernoberfläche erreicht
ξ_a	Eindringwahrscheinlichkeit in den Kern
η_b	Emissionswahrscheinlichkeit eines Teilchens b
$S_a \cdot \xi_a$	bedeutet somit den Einfangquerschnitt.

Eine Möglichkeit zur experimentellen Prüfung dieser Theorie für den Fall von Kernumwandlungen durch Gammastrahlen bietet der Vergleich der beiden Kernphotoeffekte (γ, n) und (γ, p) . Die Bildung des Zwischenkerns ist für beide Reaktionen dieselbe, man hat somit:

$$\frac{\sigma(\gamma, p)}{\sigma(\gamma, n)} = \frac{\eta_p}{\eta_n}.$$

Die Autoren berechnen die Niveaubreiten für die Emission der verschiedenen Teilchen b , so bedeutet $\Gamma_b(E)$ den Teil des Niveaus der Energie E , der der Emission eines Teilchens b zukommt. η_b wird so

$$\eta_b = \frac{\Gamma_b(E)}{\sum_{b'} \Gamma_{b'}(E)}.$$

Die Niveaubreiten $\Gamma_b(E)$ lassen sich ersetzen durch Grössen f_b , die Funktionen der Maximalenergie des emittierten Teilchens b , $\varepsilon_b \max = E - E_b$, sind.

$$f_b(E - E_b) = \Gamma_b(E) \cdot w(E)$$

$w(E)$ = Niveaudichte des Zwischenkerns. E_b = Bindungsenergie von b . Damit wird

$$\eta_b = \frac{f_b(\varepsilon_b \max)}{\sum_{b'} f_{b'}(\varepsilon_{b'} \max)}.$$

Der Nenner ist für alle Teilchen b derselbe, unser Querschnittsverhältnis wird deshalb:

$$\frac{\sigma(\gamma, p)}{\sigma(\gamma, n)} = \frac{f_p(\varepsilon_p \max)}{f_n(\varepsilon_n \max)}.$$

Die Funktionen $f_b(\varepsilon)$ können den Kurven der genannten Autoren entnommen werden; in Fig. 10 sind $f_n(\varepsilon)$ und $f_p(\varepsilon)$ für $Z = 48$

¹⁴⁾ V. F. WEISSKOPF, D. H. EWING: Phys. Rev. **57**, 472 (1940).

(Cadmium) aufgezeichnet. Wegen der verschiedenen Bindungsenergien von Protonen und Neutronen sind nun natürlich $\varepsilon_n \max$ und $\varepsilon_p \max$ für denselben Kern stets verschieden gross. Wie man sich leicht überlegt, zerfallen die durch (γ, p) entstehenden, in unseren Beispielen immer β^- -aktiven Kerne in dieselben Kerne, die aus dem Ausgangsisotop durch (γ, n) entstehen würden. Zwischen der Masse des Ausgangsatoms ${}_Z A^A$ und den Massen der zwei beim Kernphotoeffekt möglichen Endatome ${}_{Z-1} A^{A-1}$ ((γ, p) -Prozess) und ${}_Z A^{A-1}$ ((γ, n) -Prozess) und zwischen diesen gelten die drei Gleichungen:

$${}_{Z-1} A^{A-1} + H - |E_p| = {}_Z A^A \quad (1)$$

$${}_Z A^{A-1} + n - |E_n| = {}_Z A^A \quad (2)$$

$${}_{Z-1} A^{A-1} - {}_Z A^{A-1} = E_\beta. \quad (3)$$

Wären die Atommassen bekannt, so könnte man aus (1) und (2) unmittelbar die Bindungsenergien bestimmen. Dies ist jedoch für die schwereren Kerne nicht der Fall; man muss sich deshalb damit begnügen, aus den Gleichungen den Unterschied der Bindungsenergien E_n und E_p zu ermitteln. Zu diesem Zweck subtrahiert man (2) von (1) und setzt zugleich (3) ein. Man erhält:

$$|E_p| - |E_n| = E_\beta - (n - H) = E_\beta - 0,76 \quad (\text{MeV})$$

oder

$$\varepsilon_n \max - \varepsilon_p \max = E_\beta - 0,76 \quad (\text{MeV}).$$

Die Energien E_β sind in Tab. 2, Spalte 2, angegeben. Für As^{76} , Nb^{97} und Ag^{110} sind die angenommenen Werte wahrscheinlich zu klein, da die bei diesen Kernen auftretende Gammastrahlung mangels Kenntnis des genauen Zerfallsschemas unberücksichtigt gelassen wird. Da unsere Gammaquanten die Energie 17,2 MeV besitzen, werden die Energien $\varepsilon_b \max$:

$$\varepsilon_b \max = E - E_b = 17,2 - E_b \quad (\text{MeV}).$$

Bei Chrom und Titan werden die Bindungsenergien aus den von POLLARD¹⁵⁾ angegebenen Massen der auftretenden stabilen Isotope berechnet. Bei den übrigen schwereren Kernen wird als wahrscheinlichste Bindungsenergie E_n der Wert 10 MeV angenommen; die damit berechneten Wirkungsquerschnittsverhältnisse sind in Tab. 2, Spalte 4 zusammengestellt. Als untere Grenze von E_n kann der Wert 7,5 MeV angesehen werden; mit dieser minimalen Bindungsenergie erhält das berechnete Querschnittsverhältnis

¹⁵⁾ E. POLLARD: Phys. Rev. **57**, 1186 (1940).

$\sigma(\gamma, p)/\sigma(\gamma, n) = f_p(\epsilon_p)/f_n(\epsilon_n)$, wie aus dem Verlauf der beiden Kurven in Fig. 10 gut ersichtlich ist, einen maximalen Wert. In dieser Figur haben wir die Werte von f_p und f_n für die verschiedenen beim Cadmium auftretenden (γ, p) -Reaktionen unter Annahme einer Bindungsenergie von 7,5 MeV für Neutronen bestimmt. Für Cd^{111} und Cd^{113} muss man die so erhaltenen Wirkungsquerschnittsverhältnisse nach Angabe von WEISSKOPF und EWING mit 4 multiplizieren, da sich die zwei Endkerne nicht in derselben Energieschale befinden; der (γ, p) -Prozess führt auf einen Kern vom (u, u) -Typ (ungerade Neutronen- und ungerade Protonenzahl), während beim (γ, n) -Prozess ein Kern vom (g, g) -Typ als Endkern auftritt. Die so berechneten, maximalen theoretischen Wirkungsquerschnittsverhältnisse $\sigma(\gamma, p)/\sigma(\gamma, n)$ sind in Tab. 2, Spalte 5 angeführt.

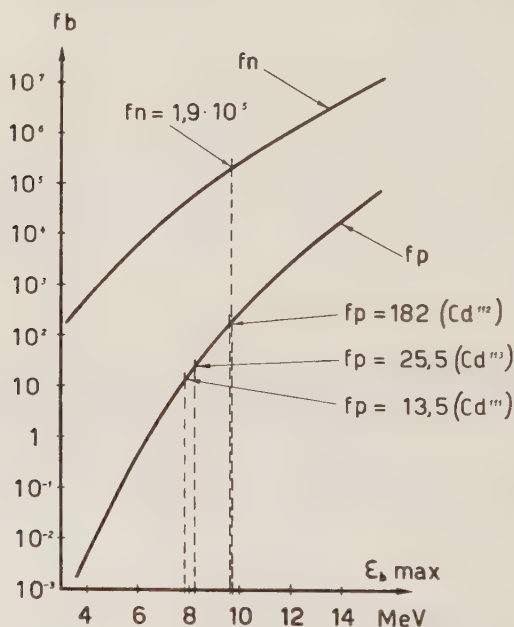


Fig. 10.

Die Funktionen f_n und f_p für $Z = 48$ (Cd).

(Die Kurven wurden der Arbeit von Weisskopf und Ewing¹⁴) entnommen.)

Um für dieses Verhältnis den experimentellen Wert angeben zu können, muss man die zum Kupferkernphotoeffekt relativen Wirkungsquerschnitte der (γ, n) -Reaktionen an den betreffenden Kernen kennen. Diese Querschnitte nehmen mit wachsender Kernladung Z stetig zu. Für Isotope ein und desselben Elementes sind sie bei

den mittleren und schweren Kernen, soweit sie mit der angewandten Nachweismethode (Radioaktivität des Endkerns) gemessen werden können, innerhalb der Messfehler als gleich gefunden worden²⁾. Man macht aus diesen Gründen sicher keinen ins Gewicht fallenden Fehler, wenn man für $\sigma(\gamma, n)_{\text{rel}}$ den Querschnitt des (γ, n) -Prozesses an einem Nachbarisotop desselben Elementes annimmt. Die so erhaltenen experimentellen Wirkungsquerschnittsverhältnisse $[\sigma(\gamma, p)/\sigma(\gamma, n)]_{\text{exp}}$ sind in Tab. 2, Spalte 3 zusammengestellt.

Tabelle 2.

Zusammenstellung der experimentellen und theoretischen Wirkungsquerschnittsverhältnisse.

Reaktion	Betaenergie des Endkerns	$\left[\frac{\sigma(\gamma, p)}{\sigma(\gamma, n)} \right]_{\text{exp}}$	$\left[\frac{\sigma(\gamma, p)}{\sigma(\gamma, n)} \right]_{\text{th}}$	$\left[\frac{\sigma(\gamma, p)}{\sigma(\gamma, n)} \right]_{\text{th}}$
Ti ⁵⁰ (γ, p) Sc ⁴⁹	1,8 MeV	0,054	$1,2 \cdot 10^{-2}$	—
Cr ⁵³ (γ, p) V ⁵²	1,98 MeV	0,324	$4,7 \cdot 10^{-2}$	—
Se ⁷⁷ (γ, p) As ⁷⁶	3,24 MeV	0,048	$2,1 \cdot 10^{-4}$	$2,0 \cdot 10^{-3}$
Mo ⁹⁸ (γ, p) Nb ⁹⁷	1,4 MeV	0,028	$2,6 \cdot 10^{-4}$	$1,4 \cdot 10^{-3}$
Pd ¹⁰⁵ (γ, p) Rh ¹⁰⁴	2,3 MeV	0,055	$7,8 \cdot 10^{-5}$	$7,7 \cdot 10^{-4}$
Cd ¹¹¹ (γ, p) Ag ¹¹⁰	2,6 MeV	0,034	$1,8 \cdot 10^{-5}$	$2,9 \cdot 10^{-4}$
Cd ¹¹² (γ, p) Ag ¹¹¹	0,8 MeV	0,040	$1,9 \cdot 10^{-4}$	$1,0 \cdot 10^{-3}$
Cd ¹¹³ (γ, p) Ag ¹¹²	2,2 MeV	0,046	$4,6 \cdot 10^{-5}$	$5,4 \cdot 10^{-4}$
Sn ¹¹⁷ (γ, p) In ¹¹⁶	2,8 MeV	0,022	$7,7 \cdot 10^{-6}$	$1,4 \cdot 10^{-4}$
Sn ¹¹⁸ (γ, p) In ¹¹⁷	1,73 MeV	0,011	$2,1 \cdot 10^{-5}$	$1,8 \cdot 10^{-4}$

(In Spalte 4 wird eine Bindungsenergie E_n von 10 MeV angenommen, in Spalte 5 eine solche von 7,5 MeV. Für Ti⁵⁰ und Cr⁵³ wird E_n aus den in Lit. 15 angegebenen Massen berechnet.)

Ein Vergleich der Spalte 3 mit den Spalten 4 und 5 zeigt, dass die theoretischen Werte der Wirkungsquerschnittsverhältnisse durchwegs wesentlich kleiner sind als die experimentellen.

In Tab. 3 sind alle Kernphotoeffekte, die an den Elementen Magnesium, Aluminium und Silicium beobachtet werden, zusammengestellt. Bei diesen leichten Elementen sind die Voraussetzungen der Theorie von WEISSKOPF und EWING nicht erfüllt.

Wie man sieht, sind die Wirkungsquerschnitte für (γ, p) annähernd gleich gross wie diejenigen für (γ, n) . Dies widerspricht der Erwartung. Die Bindungsenergie für Protonen ist zwar bei den beobachteten (γ, p) -Prozessen kleiner als diejenige der Neutronen bei den (γ, n) -Prozessen, doch ist der Potentialwall noch von beträchtlicher Grösse ($\sim 4,5$ MeV), so dass dieses Verhalten

unseres Erachtens nicht auf energetische Gründe zurückzuführen ist, sondern vielmehr dieselbe Ursache haben muss, wie die im Vergleich zur Theorie zu grossen (γ, p) -Wirkungsquerschnitte der

Tabelle 3.
Kernphotoeffekte an den Elementen Mg, Al und Si.

Reaktion	$\sigma(\gamma, p)_{\text{rel}}$	$\sigma(\gamma, n)_{\text{rel}}$
$\text{Mg}^{24}(\gamma, n) \text{Mg}^{23}$	—	1,1% (16,4)
$\text{Mg}^{25}(\gamma, p) \text{Na}^{24}$	2,83% (12,3)	—
$\text{Mg}^{26}(\gamma, p) \text{Na}^{25}$	1,56% (13,0)	—
$\text{Al}^{27}(\gamma, n) \text{Al}^{26}$	—	4,0% (14,4)
$\text{Si}^{28}(\gamma, n) \text{Si}^{27}$	—	0,7% (16,9)
$\text{Si}^{29}(\gamma, p) \text{Al}^{28}$	3,45% (11,7)	—
$\text{Si}^{30}(\gamma, p) \text{Al}^{29}$	1,26% (13,7)	—

(Die eingeklammerten Werte sind die Bindungsenergien der emittierten Teilchen in MeV. Die Grössen der Neutronenbindungsenergien (Spalte 3) sind der Veröffentlichung von BECKER, HANSON und DIVEN¹⁶⁾ entnommen.)

in Tab. 2 aufgeführten mittelschweren Kerne. Die Erklärung hierfür kann wohl nur durch eine im Falle des Kernphotoeffekts mit Protonenemission entsprechend modifizierte Vorstellung vom Ablauf der Kernreaktion gegeben werden.

Zum Schlusse ist es uns eine angenehme Pflicht, Herrn Prof. Dr. P. SCHERRER für das fördernde Interesse, das er dieser Untersuchung entgegengebracht hat, unseren herzlichen Dank auszusprechen.

Zürich, Physikalisches Institut der ETH.

¹⁶⁾ R. A. BECKER, A. O. HANSON, B. C. DIVEN: Bull. Am. Phys. Soc. 22 N 1, B 4 (1947).

Über eine Methode zur Messung sehr kleiner Änderungen elektrischer Kapazitäten und Phasenwinkel im Gebiete der Ton- und Niederfrequenz

von Lienhard Wegmann.

(10. VII. 1947.)

1. Einleitung.

Für die Messung von sehr kleinen Änderungen elektrischer Kapazitäten, dielektrischer Verlustwinkel und Dielektrizitätskonstanten werden wesentlich zwei Methoden verwendet, nämlich die SCHERING'sche Brücke¹⁾ und das Überlagerungsverfahren²⁾. Beide Methoden konnten im Laufe der Zeit von verschiedenen Autoren so verfeinert werden, dass heute im Gebiete der hohen Frequenzen (10^5 — 10^6 Hertz) allgemein eine Empfindlichkeit für relative Kapazitätsänderungen von $E = 10^{-7} \frac{\Delta C}{C}$ /Skt. erreicht werden kann³⁾ — in einer speziellen Anordnung wurde die Empfindlichkeit bis $2 \cdot 10^{-8} \frac{\Delta C}{C}$ /Skt. gesteigert⁴⁾. Im Gebiete der mittleren und niederen Frequenzen (10^2 — 10^4 Hertz), wo nur noch die Brückenmethode für empfindliche Messungen anwendbar ist, blieb jedoch die Entwicklung jederzeit um etwa eine Grössenordnung zurück; die empfindlichsten Apparaturen führten bis $E = 10^{-6} \frac{\Delta C}{C}$ /Skt.⁵⁾, und die mit grösster Sorgfalt angebrachten Verbesserungen von ASTIN⁶⁾ ermöglichten noch, einen Wert von $E = 5 \cdot 10^{-7} \frac{\Delta C}{C}$ /Skt. zu erreichen. Diese Grenze ist bis heute nicht überschritten worden; es scheint damit die Leistungsfähigkeit der Brückenmethode in diesem Frequenzbereich erreicht zu sein, und es ist nicht zu erwarten, dass die Methode bei Ton- und Niederfrequenz je gleiche Empfindlichkeiten zu liefern instande

¹⁾ H. SCHERING, Z. Instrumentenkunde **40**, 120 (1920).

²⁾ I. HERWEG, Z. f. Phys. **3**, 36 (1920).

³⁾ R. W. SCHULZ, Z. f. Phys. **109**, 517 (1938).

⁴⁾ W. BÜNGER, Z. f. Phys. **91**, 679 (1934).

⁵⁾ J. C. BALSBOUGH und A. HERZENBERG, J. Frank. Inst. **218**, 49 (1934).

⁶⁾ A. V. ASTIN, J. of the Bur. of Stand. **21**, II/425 (1938).

ist, wie sie bei Hochfrequenz erreicht werden. Es ist deshalb die Frage, ob nicht vielleicht eine Steigerung der Empfindlichkeit durch einen Wechsel in der Wahl der Methode ermöglicht werden könnte. Solche Änderungen der Methode sind schon verschiedentlich versucht worden. Gewisse Erfolge zeitigte dabei die

2. Messung von Phasenwinkeln mit der Kathodenstrahlröhre.

In einer Arbeit von NIJENHUIS¹⁾ werden eine ganze Reihe von Anordnungen beschrieben, die eine Phasenwinkelmessung mit der Kathodenstrahlröhre gestatten. Es ist klar, dass sich eine empfindliche Messung nur dort verwirklichen lässt, wo der Messbereich derart verkleinert ist, dass die Verschiebung eines Bildpunktes über die ganze Bildfläche der Röhre nur einen kleinen Teil einer Phasenverschiebung um 2π wiedergibt. Einen Ansatz zu einer solchen Steigerung der Empfindlichkeit enthält NIJENHUIS' Methode der LISSAJOUS-Figuren, wo nach jeder Phasenverschiebung von $\pi/8$ der ganze Messbereich durchlaufen ist.

Um eine sehr viel stärkere Steigerung der Empfindlichkeit zu erreichen, kann der Messbereich auf folgende Weise eingeschränkt werden: Die sinusförmigen Wechselspannungen gleicher Frequenz, deren gegenseitige Phasendifferenz sichtbar gemacht werden soll, werden vorerst durch eine zweckmässige Schaltung in eine Reihe von „rechteckigen“ Impulsen verwandelt in der Weise, dass jeder positiven Halbwelle der Sinusspannung ein Impuls der rechteckigen Spannung entspricht, wie dies für eine einzelne Welle in Fig. 1a/b dargestellt ist. Diese Impulsreihe wird nun durch eine kapazitive Koppelung differenziert (Fig. 1c) und in dieser Form werden die zu vergleichenden Spannungen (Fig. 1c und c') auf die beiden Ablenkplattenpaare einer Kathodenstrahlröhre gegeben. Die Phasenverschiebung zwischen den beiden Impulsreihen wird nun beobachtet am stehenden Bild, das die beiden fast senkrechten Anstiege der entsprechenden Impulse beider Reihen miteinander erzeugen. Koinzidieren die beiden Impulse genau, so bilden ihre Anstiege auf dem Schirm der Kathodenstrahlröhre eine Gerade, die unter 45° (bei gleicher Ablenkleistung) gegen die Horizontale geneigt ist; verschiebt sich aber die Phase um nur ein Geringes, so erhält man Bilder von der Art der Fig. 1d. Der ganze Messbereich ist nun auf die kleine Zeit beschränkt, welche die Impulse aus Fig 1c zur Erreichung der Potentialspitze benötigen. Diese Zeit kann aber

¹⁾ W. NIJENHUIS, Philips techn. Rundschau 5, 210 (1940).

sehr klein gegenüber der Schwingungsdauer gewählt werden, so dass eine solche Anordnung sehr empfindlich gestaltet werden kann.

Die beschriebene Methode wurde für die technische Frequenz (50 Hertz) untersucht. Für die Verwandlung der Sinusspannungen in rechteckige Impulsreihen wurden Multivibratoren verwendet, wie sie aus der Zählrohrtechnik bekannt sind¹⁾. Die Ausgänge der Multivibratoren werden über Kapazität und Ableitwiderstand auf

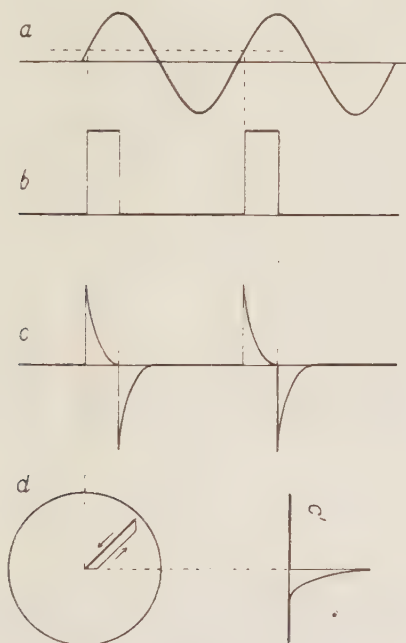


Fig. 1.

einen Kathodenstrahloszillographen gegeben, wo das beschriebene Bild erscheint. Dieses Bild ist nun allerdings nicht konstant, sondern die zu beobachtende Linie zeigt starke Oszillationen um ihre Nulllage herum, welche angesichts der niedrigen Frequenz des Vorganges als eine Wirkung des Funkeffektes der Glühkathoden gedeutet wurden. Dementsprechend konnten diese Oszillationen stark geschwächt werden durch Unterheizung der Röhren und Erhöhung der Elektrizitätsmenge auf dem Gitter (Gitter—Kathodenkapazität). Die gleichzeitige Abnahme der Ausgangsamplitude

¹⁾ J. STRONG, Mod. Phys. Lab. Pract., Blackie & Son Lim. (p. 284), London and Glasgow 1942. — H. J. REICH, Theor. o. Appl. of El. Tubes, II. Ed. (p. 362), McGraw-Hill Book Comp., New York 1944.

Durch geeignete Wahl der Gitterkopplungselemente kann das Auflösungsvermögen der Schaltung verändert werden, d. h. es kann der maximale Zeitabstand zweier Impulse, welche noch als Koinzidenz registriert werden sollen, vorgegeben werden. Dieses Auflösungsvermögen ist nun aber nicht durch die Koinzidenzschaltung allein definiert, sondern variiert auch noch mit der Empfindlichkeit des die Koinzidenzimpulse registrierenden Verstärkers, was an Hand von Fig. 4 sofort einzusehen ist. Fig. I und II zeigen eine Anzahl von Impulsen, die zum Zwecke der Koinzidenzbestimmung auf die Gitter I und II der Koinzidenzschaltung gegeben werden; dabei ist die Zeitachse so normiert,

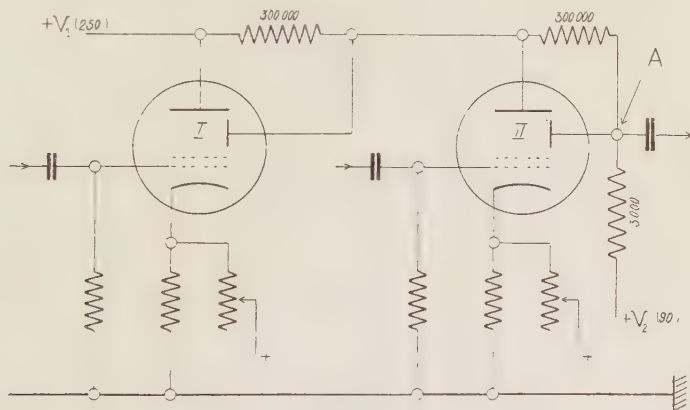


Fig. 3.

dass die Zeit, da ein Impuls auf Gitter I anlangt, durchgehend mit t_0 bezeichnet wird, so dass in Fig. II die Koinzidenzzeit als $|t - t_0| = \tau$ auftritt. Fig. III zeigt nun den zu jeder Koinzidenzzeit (Koinzidenzschärfe) zugehörigen Ausgangsimpuls der Koinzidenzschaltung (für unveränderte Gitterkopplungselemente und unveränderten Registrierverstärker). Die Amplitude der Koinzidenzimpulse bleibt demnach konstant bis zu einer Koinzidenzzeit τ_1 und nimmt dann kontinuierlich ab bei Annäherung an eine gewisse maximale Koinzidenzzeit τ_2 , bei welcher sie ganz verschwindet. Es ist nun offenbar, dass mit der Empfindlichkeit E (Fig. III) der Registrierschaltung auch das beobachtete Auflösungsvermögen der Koinzidenzschaltung, dessen Zeitkonstante τ_A zwischen τ_1 und τ_2 liegt, variiert. Ersetzt man die beiden Einzelimpulse durch zwei periodische Impulsreihen gleicher Frequenz ν , so gibt auch die Koinzidenzschaltung eine Impulsreihe dieser Frequenz, deren Amplitude konstant bleibt, solange die Phasendifferenz zwischen

deren Ausgangsimpulse statt auf die Kathodenstrahlröhre jetzt auf die Koinzidenzschaltung von PICCIONI geleitet wurden. Die Registrierung der Koinzidenzen erfolgte durch einen Zweiröhrenverstärker mit Thyatron als Endröhre¹⁾. Die Prüfung der Koinzidenzschaltung geschah nun dadurch, dass bei fest gewählten Gitterkopplungselementen die Koinzidenzzeit zwischen den beiden

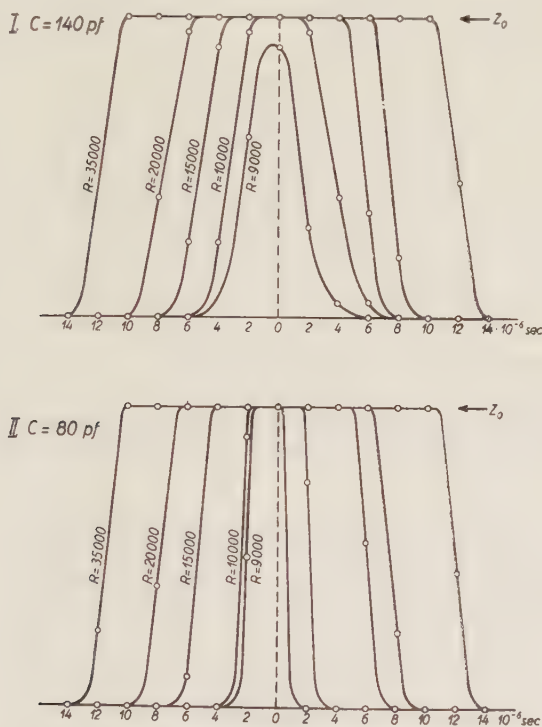


Fig. 5.

Eingangsimpulsen verändert wurde. Bei jedem einzelnen Wert dieser Koinzidenzzeit wurden eine bestimmte Anzahl Impulspaare ausgelöst und die Anzahl der registrierten Koinzidenzen gezählt. Diese Zahl entspricht also der relativen Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein Impulspaar mit vorgegebener Koinzidenzzeit als Koinzidenz registriert wird. Bei Veränderung der Koinzidenzzeit muss sich deshalb wieder die in Fig. 4/III dargestellte Kurve ergeben. Eine Anzahl solcher experimentell aufgenommenen Kurven zeigt Fig. 5. Die Abszisse enthält die Zeitdifferenz zwischen

¹⁾ H. BRADT und P. SCHERRER, *Helv. Phys. Acta* **16**, 252 (1943).

den beiden Impulsen, während die Ordinate die Anzahl z der auf z_0 Eingangsimpulse gleicher Koinzidenzzeit registrierten Koinzidenzen zeigt. Als Parameter sind die Gitterableitwiderstände der Koinzidenzröhren gewählt; die Abhängigkeit der Kurven von den Kopplungskapazitäten ist durch Vergleich von Fig. I und Fig. II ersichtlich.

Aus diesen Untersuchungen lassen sich folgende Schlüsse ziehen: der Grenzbereich der Amplitudenkurve ist um so schmaler und steiler, je kleiner die Zeitkonstante RC der Gitterkoppelungen gewählt wird; bei gleicher Zeitkonstante RC nimmt die Steilheit des Grenzbereiches mit dem Verhältnis R/C zu. Es ist deshalb für unsere Zwecke eine Gitterkoppelung mit möglichst kleinen Elementen erwünscht, wobei vor allem die Kopplungskapazität klein zu wählen ist. In Übereinstimmung mit diesen Überlegungen wurde später festgestellt, dass die besten Resultate mit den Kopplungselementen $C = 10$ cm und $R = 15000 \Omega$ erreicht wurden. Bei kleinerer Zeitkonstante RC nimmt die Maximalamplitude rasch ab, wie dies schon in Fig. 5/I festzustellen ist, und der Gewinn an Steilheit wird damit illusorisch.

Die Asymmetrie der aufgenommenen Kurven dürfte ihren Grund in einer Unsymmetrie der Kopplungselemente haben; diese Frage interessiert hier nicht näher, indem wir uns ja auf die Betrachtung nur eines der beiden Bereiche beschränken können.

4. Prinzip der Koinzidenzmethode.

Zur Ausarbeitung dieser empfindlicheren Methode wurde der technisch einfacheren Behandlung wegen eine Frequenz von 8000 Hertz gewählt. Die Prinzipschaltung der Methode ist in Fig. 6 dargestellt. Zur Herstellung einer sinusförmigen Wechselspannung von 8000 Hertz wurde ein Röhrengenerator (G) berechnet, dessen Frequenz durch Anoden- und Gitterstabilisierung konstant gehalten wird¹). (Die Einzelheiten der Schaltungen sind aus der Gesamtschaltung, Fig. 12, ersichtlich.) An diesen Generator ist möglichst lose angekoppelt ein Dreiröhrenverstärker (V_1) mit hochempfindlicher Mikrophonröhre als Eingang. Dadurch können Rückwirkungen auf den Generator stark unterdrückt werden, und eine drahtlose Ankoppelung, wie sie bei der Überlagerungsmethode für empfindliche Messungen notwendig ist²), wird überflüssig, insbesondere da ja bei der vorliegenden

¹) F. E. TERMAN, Radio Eng. Handb. I. Ed., p. 487, Type i. (McGraw-Hill Book Comp., New York and London 1943).

²) R. W. SCHULZ, Z. f. Phys. **109**, 517 (1938).

Methode in der ganzen Apparatur nur eine einzige Frequenz verwendet wird. Die auf diese Weise verstärkte Sinusspannung wird nun einerseits auf einen Multivibrator (M_I) gegeben, wo sie in die gewünschte Impulsreihe verwandelt werden soll, andererseits auf eine Schaltung (C), worin sich die Kapazität befindet, deren Änderungen gemessen werden sollen. Da hier die Amplitude der Wechselspannung wieder stark heruntergesetzt wird, muss an ihrem Ausgang ein zweiter Verstärker (V_{II}) angeschlossen werden, der die

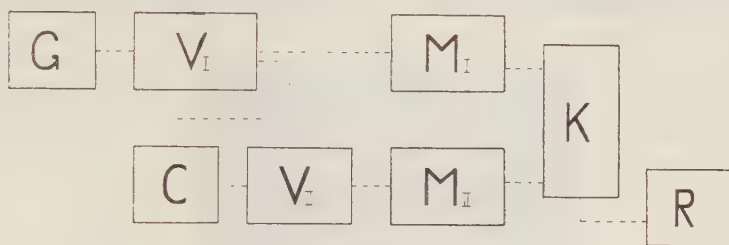


Fig. 6.

nun in der Phase etwas verschobene Sinusspannung auf den zweiten Multivibrator (M_{II}) leitet. Die Ausgänge der beiden Multivibratoren endlich steuern die Koinzidenzschaltung (K), deren Ausgangsamplitude zur Registrierung (R) der Phasendifferenz dienen wird.

Die wesentlichen Punkte in der Schaltung sind nun offenbar einerseits die Steilheit der Koinzidenzschaltung, wie sie im vorhergehenden Abschnitt geschildert wurde, und andererseits die Steilheit der Impulsreihen, die die Multivibratoren liefern.

5. Die Multivibratoren.

Bei der Beobachtung von Kippschwingungen eines Multivibrators macht man die Feststellung, dass in der Regel der Spannungsabfall steiler verläuft als der Spannungsanstieg, und zwar an jeder der beiden Anoden. Dies ist darauf zurückzuführen, dass bei kapazitiver Ankoppelung die massgebende Zeitkonstante für die Entladung der Kapazität kleiner ist als für die Aufladung, da für die Entladung im wesentlichen nur der Röhrenwiderstand wirksam ist. Da nun die Koinzidenzschaltung von Picconix positive Steuerimpulse verlangt, sind die Ausgangsimpulse der Multivibratoren nicht direkt zur Steuerung zu verwenden, sondern es wird vorerst in einer Umkehröhre ein steiler Potentialabfall in einen steilen Anstieg verwandelt (Fig. 7, Röhre IV). Dies ist deshalb

möglich, weil für die erwähnte Zeitkonstante bei der Umkehrröhre nur die kleine Kopplungskapazität C_K zur Koinzidenzschaltung in Betracht fällt, beim Multivibratorausgang jedoch zusätzlich noch die viel grössere Rückkopplungskapazität C_R wirksam ist.

Es ist verständlich, dass ein Multivibrator, an dessen erstem Steuergitter eine Sinusspannung liegt, eine Impulsreihe liefert, die nicht von der Steilheit ist, die bei Steuerung mit einer Reihe von steilen Impulsen zu erwarten wäre. Um diesem Umstand Rechnung zu tragen, wurden zwei Multivibratoren hintereinandergeschaltet, wie dies früher schon beschrieben wurde (Fig. 2). Es zeigte sich jedoch, dass mit einer eleganteren Lösung noch bessere Resultate erzielt werden, indem nämlich die zwei Multivibratoren mit einer gemeinsamen Röhre gekoppelt werden, so dass ein Dreiröhren-Multivibrator entsteht (Fig. 7). Die erste Röhre hat dabei, zu-

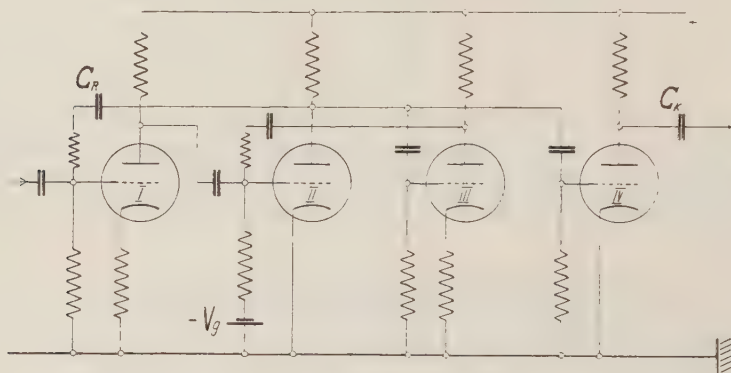
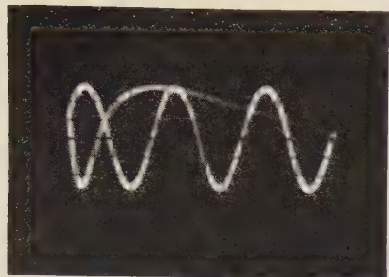


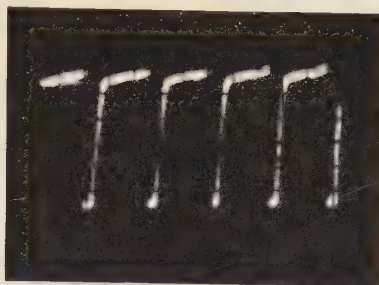
Fig. 7.

sammen mit der Röhre II, die Funktion eines sehr steilen Verstärkers, während die Röhren II und III zusammen die eigentliche Kippschaltung bilden, welche nun durch eine Schwingung mit steilen Amplituden gesteuert wird und dementsprechend sehr steile Impulsreihen liefert. Die beschriebene Funktion der einzelnen Röhren ist aus der oszillographischen Aufnahme ihrer Anodenpotentiale in Fig. 8 ersichtlich. Bild 1 zeigt die von Oszillator und Vorverstärkern gelieferte Sinusspannung, die auf das Gitter von Röhre I gelangt und an deren Anode bereits zur Kurve von Bild 2 verzerrt ist. Der zur Weiterverstärkung benutzte steile Potentialabfall an der Anode von Röhre II ist in Bild 3 sehr deutlich sichtbar, während Bild 4 den entsprechenden steilen Potentialanstieg an der Anode der Röhre IV zeigt. Zur Deutlichmachung des steilen Anstieges zeigt Bild 5 eine zeitliche Vergrößerung von

1



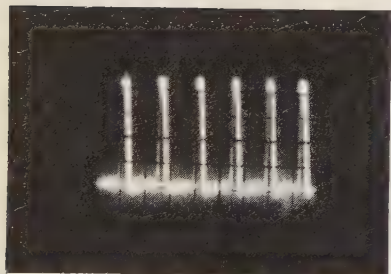
2



3



4



5

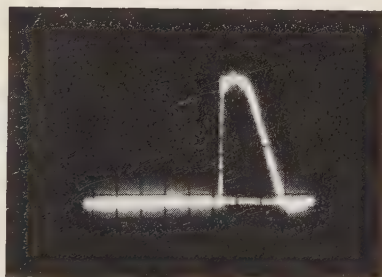


Fig. 8.

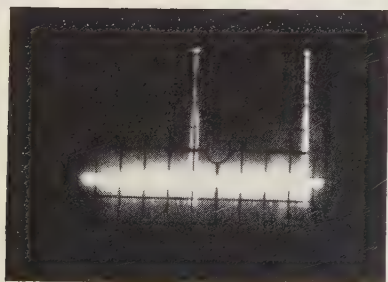


Fig. 9.

Bild 4. Diese letzte Impulsreihe gelangt nun auf das eine Steuer-
gitter der Koinzidenzschaltung, während von der zweiten Multi-
vibratorschaltung her die genau gleiche, jedoch in der Phase etwas
verschobene Impulsreihe auf das zweite Gitter der Koinzidenz-
schaltung geführt wird. Bei genügend kleiner Phasendifferenz der
beiden Reihen erzeugt die Koinzidenzschaltung selbst wieder eine
Impulsreihe, deren Form Fig. 9 zeigt. Die Amplitude dieser Impuls-
reihe gibt nun das Mass für die Phasendifferenz zwischen den
Kippschwingungen der Multivibratoren. (Da diese Impulse sehr
kurz sind, musste zum Zwecke genügender Synchronisierung bei der
Aufnahme eine höhere Ablenkfrequenz gewählt werden.)

6. Die Registrierung.

Die maximale Ausgangsamplitude der Koinzidenzschaltung be-
trägt einige Volt. Wie aus Fig. 9 ersichtlich ist, sind die Impulse
an dieser Stelle sehr schmal. Um eine empfindliche Messung zu
ermöglichen, müssen deshalb die Impulse verstärkt und vor allem
verbreitert werden, was in einem weiteren Verstärker geschieht.
(Vgl. Gesamtschaltung, Fig. 12.) Die so verstärkte Impulsreihe ist
in Fig. 10 wiedergegeben. Diese Impulsreihe gelangt nun auf die

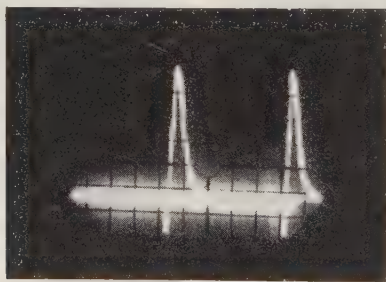


Fig. 10.

Endröhre, welche folgendermassen geschaltet ist (Fig. 11). Die
Röhre ist durch eine negative Vorspannung gesperrt. In Serie zu
einem Anodenwiderstand von $1000\ \Omega$ befindet sich ein Galvano-
meter (MA) mit einem Messbereich von 1 Milliampère und kleinem
Innenwiderstand; parallel zum Anodenwiderstand ist ein Spiegel-
galvanometer (G) geschaltet, das mit $10000\ \Omega$ innerem Wider-
stand eine Empfindlichkeit von $6 \cdot 10^{-10}$ Amp./Skt. besitzt. Der
pulsierende Strom, welcher durch die auf die Endröhre gelangenden

Koinzidenzimpulse ausgelöst wird, mittelt sich in den Galvanometern und erzeugt einen Ausschlag, der in dieser Anordnung einem Gleichstrom von einigen Milliampère maximal entspricht, d. h. bei „vollständiger“ Koinzidenz. Bei Verschlechterung der Koinzidenzschärfe nimmt der Ausschlag ab und wird schliesslich beinahe Null. Der Nullstrom im Spiegelgalvanometer kann bei guter Isolation auf einen Wert von ca. 10^{-8} Amp. heruntergesetzt werden. Dieser Reststrom ist zeitlich konstant und für die Messung unwesentlich. Selbstverständlich ist das Spiegelgalvanometer nicht bis zum Maximalstrom verwendbar, weshalb das zweite, unempfindlichere Galvanometer angebracht ist, das zur Einstellung des richtigen Messbereiches dient. Um den Messbereich des Spiegel-

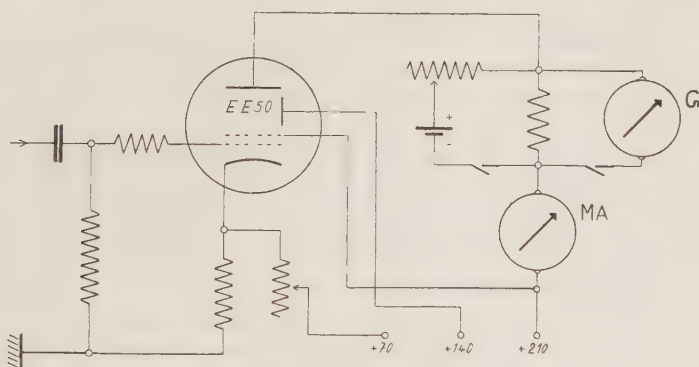


Fig. 11.

galvanometers zu erweitern, kann eine Kompensationsspannung an den Anodenwiderstand gelegt werden (Fig. 11). Dies wird zur Erreichung grosser Empfindlichkeit notwendig, da sich der Ausschlag bei kleinen Koinzidenzamplituden ungefähr proportional dem Quadrate der Phasenverschiebung ändert; sobald eine gewisse mittlere Stromstärke erreicht ist, wird der Ausschlag dagegen in weitem Bereiche proportional der Phasenverschiebung, was noch durch Messresultate belegt werden wird.

Dem Proportionalitätsbereich entspricht nun aber bei den auf die Koinzidenzschaltung gelangenden Impulsreihen ein ganz bestimmter Bereich der Phasendifferenzen; es muss daher die Möglichkeit bestehen, jede in der Apparatur auftretende Phasendifferenz so zu kompensieren, dass sie in diesen Bereich hinein zu liegen kommt. Die diesem Zwecke dienenden Vorrichtungen lassen sich am besten an der Gesamtschaltung der Apparatur aufzeigen.

7. Gesamtschaltung (Fig. 12).

Die beiden primären Sinuswellen, welche aus dem Verstärker V_I hervorgehen, zeigen bereits eine relativ grosse Phasendifferenz, hervorgerufen durch die verschiedenartige Ankoppelung. Während nun die eine Welle direkt durch den Multivibrator M_I auf die Koinzidenzschaltung K gelangt, durchläuft die zweite Welle nach Passieren der Schaltung C , in welcher die zu messende Phasendrehung stattfinden wird, den Verstärker V_{II} und gelangt erst jetzt durch den Multivibrator M_{II} auf die Koinzidenzstufe. Diese Welle II hat also bei der Ankunft auf V_{II} in Bezug auf die Welle I eine grosse Phasendifferenz, welche natürlich bis zur Ankunft in der Koinzidenzschaltung zum grössten Teil rückgängig gemacht werden muss. Dies geschieht durch eine ungeradstufige Verstärkung in V_{II} , in Zusammenwirkung mit einer Selbstinduktion in der dritten Stufe, die, als Primärseite eines Transformators, durch die Belastung der Sekundärseite verändert werden kann. Mit Hilfe dieser Phasenkorrekturen ist es leicht, grobe Phasendifferenzen auszugleichen, so dass für den Einbau der Messkapazität je nach der gewünschten Empfindlichkeit eine beliebige Schaltung gewählt werden kann. Dagegen ist es mit Hilfe dieser Mittel nicht möglich, eine Feinabgleichung durchzuführen, wie sie bei grosser Empfindlichkeit notwendig wird. Da nun zwischen Kippschwingung des Multivibrators und erzeugender Sinuswelle eine Phasendifferenz besteht, die von der Amplitude der Sinuswelle abhängt (vgl. Figg. 1a/b), so kann durch Änderung der Ausgangsamplituden der Verstärker eine Phasenkorrektur in beliebiger Richtung erzeugt werden. Zur Feineinstellung wurde deshalb die Anordnung W zwischen V_I und M_I angebracht, welche aus zwei Regulierwiderständen W_1 und W_2 verschiedener Grösse besteht. Mit Hilfe dieser Mittel ist es möglich, für jede gewünschte Schaltung der Messkapazität (vgl. C in Fig. 12) die Phasendifferenzen in der Apparatur so weit zu kompensieren, dass das Milliampèremeter MA in der Endröhre einen Ausschlag zeigt. (Zur bequemer Einstellung können bis dahin die Phasendifferenzen mittels eines Kathodenstrahloszillographen beobachtet werden (vgl. Abschnitt 2)). Nun wird dieser Ausschlag durch die Feinkorrektur der Phase bei W_1 und W_2 gerade zum Verschwinden gebracht, worauf das Spiegelgalvanometer G eingeschaltet werden kann. Durch eine kleine Korrektur an W_2 in entgegengesetzter Richtung wird nun auf G ein Ausschlag erzeugt, der in den Proportionalitätsbereich hineinfällt, womit die Apparatur messbereit ist. Eine kleine Ände-

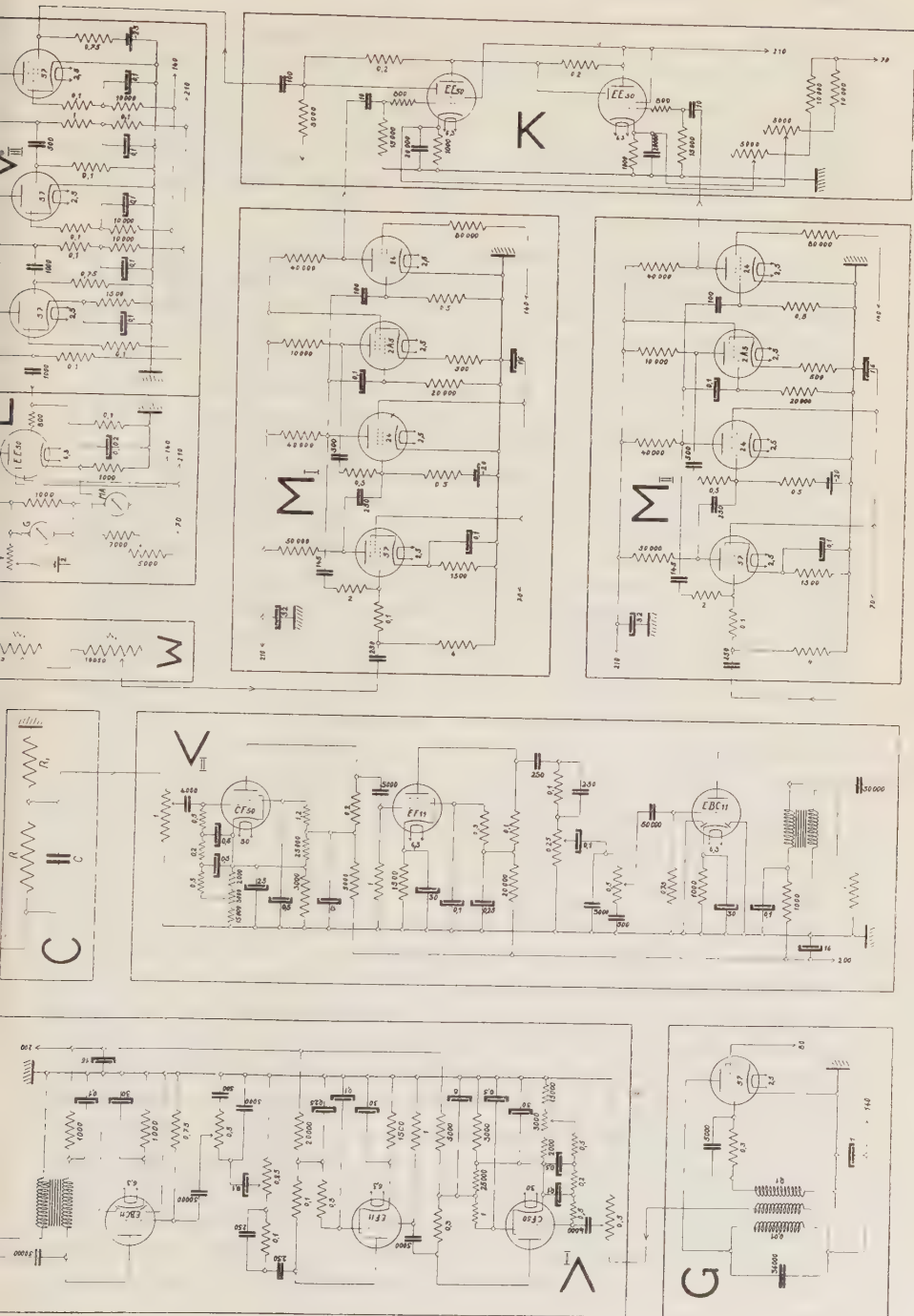


Fig. 12.

rung der Grösse der Messkapazität C oder ihres Verlustwinkels macht sich jetzt durch eine Änderung des Ausschlages am Spiegelgalvanometer bemerkbar. Die Messung dieser Änderung kann geschehen in der Art einer Nullmethode, indem die Änderung der Kapazität C durch die Änderung einer kleinen parallelgeschalteten Kapazität kompensiert wird, oder aber in einer Eichung der Apparatur.

Die ganze Apparatur ist erwartungsgemäss sehr empfindlich auf Körper- und Handkapazitäten, weshalb jede Stufe für sich in einen allseitig abgeschlossenen, geerdeten Kasten eingebaut wurde. Da die Multivibratoren auf Änderungen der Eingangsspannung sehr empfindlich sind, müssen vor allem die Anoden- und Heizspannungen der vor ihnen liegenden Teile sehr gut stabilisiert sein; es zeigte sich denn auch, dass nur Batterien oder Akkumulatoren die Anforderungen an die Konstanz der Spannungen befriedigten. Sämtliche Röhrenheizungen und Gittervorspannungen, wie auch die Anodenspannung für den Generator und die Vorverstärker mussten aus Batterien gespeist werden, während die restlichen Anodenspannungen aus einem stabilisierten Netzanschlussgerät entnommen werden konnten, wobei auf eine gute Entkoppelung zu achten ist ($2 \times 32 MF$), andernfalls die Multivibratoren in Phase schwingen. Um kurzzeitige Schwankungen auszugleichen, musste ein Messgalvanometer mit grosser Schwingungsdauer und starker Dämpfung gewählt werden, was natürlich eine Verminderung der Empfindlichkeit bedeutet; ein eventueller Verlust an Empfindlichkeit in der Galvanometerschaltung kann aber in einfacher Weise durch eine weitere Verstärkerstufe ausgeglichen werden. Für die Fernhaltung der Störungen durch das elektrische Netz der Stadt und vor allem durch die nahe Strassenbahn war die Abschirmung der Apparatur immer noch ungenügend, so dass alle Messungen nachts vorgenommen werden mussten.

Durch alle diese Massnahmen konnten die Schwankungen der Apparatur so vermindert werden, dass die später angegebene Maximalempfindlichkeit von $E = 3,5 \cdot 10^{-7} \frac{dC}{C} / \text{Skt.}$ erreicht werden konnte, d. h. dass bei dieser Empfindlichkeit die Schwankungen während einer gewissen Zeit den Betrag von ca. einem Viertel eines Skalenteils nicht überschritten, so dass ein Ausschlag auf einen Skalenteil genau abgelesen werden kann. Diese Zeiten betragen einige Minuten. Dann erfolgen Nullpunktsänderungen, welche im allgemeinen 10 bis 20 Skt. betragen, so dass die Fälschung einer Messung in der überwiegenden Zahl der Fälle dem Auge sofort sichtbar wird durch die gestörte Einstellungsgeschwindigkeit des Ausschlages. Nach einer solchen Änderung des Nullpunktes folgt jeweils eine neue Periode von einigen Minuten, welche die für Messungen notwendige Konstanz aufweist. Selbstverständlich können auch Nullpunktsänderungen von wenigen Skt. eintreten; solche Fälschungen können nur durch wiederholte Messungen erkannt werden. Die folgende Messreihe gibt ein Bild von den Schwan-

kungen eines solchen Nullausschlages; die Ablesungen folgen sich im Abstände von 20 sec — die Empfindlichkeit ist ca. $3,5 \cdot 10^{-7}$:

825	825	790	773,5	794
825	825	790	773,5	794
825	820	790	773,5	794
825	811	790	773,5	794
825	795	790	773,5	794
825	790	790	773,5	794
825	790	791,5	773,0	794
825	790	773,5	794	794
825	790	773,5	794	803

8. Eichung der Apparatur, Kapazitätsempfindlichkeit.

Die Kapazitätsempfindlichkeit der Apparatur ist definiert als $E_c = \frac{1}{\Delta A} \cdot \frac{\Delta C}{C}$, wo ΔA die durch eine bestimmte Kapazitätsänderung ΔC der Messkapazität C hervorgerufene Ausschlagsänderung des Spiegelgalvanometers bedeutet. Die Schwierigkeit dieser Eichung liegt vor allem in der Herstellung einer mit genügender Genauigkeit bekannten Kapazitätsänderung in der Grösse

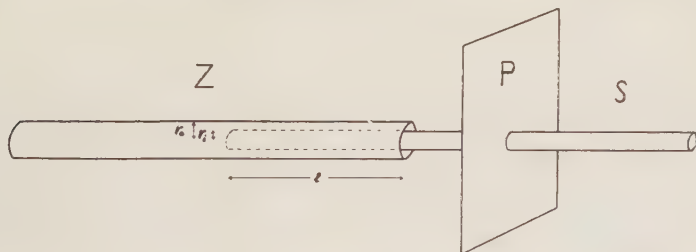


Fig. 13.

einiger Hundertstel cm, wie sie notwendig ist, wenn als Messkapazität ein Kondensator in der normalen Grössenordnung von 100 bis 1000 cm benutzt werden soll. Die wohl einfachste Lösung dieses Problems liegt in der Verwendung eines Zylinderskondensators, wie er in Fig. 13 dargestellt ist. Der Zylinder Z und die Metallplatte P sitzen — elektrisch voneinander isoliert, aber mechanisch fest verbunden — auf einer optischen Bank. Die innere Elektrode S ist auf wenige Hundertstel mm genau in der Achse des Zylinders Z zentriert und kann mit einer Mikrometerschraube verschoben werden. S ist leitend mit P verbunden; auf diese Weise wird erreicht, dass sich bei einer Verschiebung von S die Rand-

wirkung am rechten Ende des Zylinders nicht ändert. Ausserdem aber ist zu erwarten, dass bei einer genügend kleinen Verschiebung von S sich auch die Randwirkung am linken Ende von S nicht merkbar ändert, sofern nur das über das Ende von S hinausragende Stück des Zylinders lang genug gewählt wird. Unter dieser Voraussetzung hat eine Verschiebung von S um die Länge Δl nur eine Vergrösserung des homogenen Teils des Feldes im Zylinderkondensator zur Folge, so dass die Berechnung der auf diese Weise hervorgerufenen Kapazitätsänderungen einwandfrei ist. Da sich die Kapazität des Zylinderkondensators unter Vernachlässigung der Randwirkung zu $C_k = \frac{l}{2 \ln \frac{r_a}{r_i}}$ berechnet, wäre also eine solche Kapazitätsänderung zu berechnen als $\Delta C_k = k \cdot \Delta l$, wo $k = \frac{1}{2 \ln \frac{r_a}{r_i}}$. Unter diesen

Voraussetzungen, deren Richtigkeit noch geprüft werden wird, wurde der Zylinderkondensator zur Bestimmung der Kapazitätsempfindlichkeit benutzt. Die Dimensionen des Kondensors waren dabei folgende:

Länge des Zylinders (Z): 20 cm

Innerer Radius des Zylinders: 0,655 cm

Radius der Stange S : 0,3 cm,

so dass

$k = 0,640 \pm 0,006$ wird.

Die Eichung der Apparatur wurde nun vorgenommen, indem zu einer bekannten Kapazität $C_0 = 247$ pF (222 cm)¹⁾ der beschriebene Zylinderkondensator parallelgeschaltet und durch Verschieben der Stange S um die Länge Δl ein Ausschlag ΔA erzeugt wurde. Es ergibt sich bei dieser Anordnung folgende Berechnung der Empfindlichkeit:

$$E_c = \frac{1}{\Delta A} \cdot \frac{\Delta C}{C} = \frac{1}{\Delta A} \cdot \frac{k \cdot \Delta l}{C_0 + k \cdot l} = \frac{\Delta l}{\Delta A} \cdot \frac{k}{C_0 + C_k},$$

wo $\Delta l / \Delta A$ die zu messende Grösse ist. Es zeigt sich nun, dass diese Grösse mit Änderung der Widerstände R und R_1 in der Schaltung der Messkapazität (vgl. C in Fig. 12) stark variiert, und zwar lässt sich leicht rein experimentell zu einem festen R_1 ein optimaler Wert für R bestimmen, bei dem die Grösse $\Delta l / \Delta A$ ein Minimum vorliegt, so dass also an diesem Punkt eine Maximalempfindlichkeit vorliegt. Für die vorläufige Eichung ergab sich bei einem R_1 von 1000 Ω ein R von 80000 Ω als günstigster Wert. Unter diesen

¹⁾ Geeicht vom Eidg. Amt für Mass und Gewicht, Bern, zu (247 ± 1) pF.

Bedingungen wurde $\Delta l/\Delta A$ bei einem Δl von 0,015 bis 0,025 cm bestimmt zu $(1,25 \pm 0,025) \cdot 10^{-4}$ cm/Skt. Die Länge der inneren Elektrode betrug 10 cm, was einer Kapazität $C_k = l \cdot k$ von 6,4 cm gleichkommen würde, ohne Berücksichtigung der inneren Randwirkungen und der verteilten Kapazität. Diese dürften schätzungsweise die Kapazität um ca. 25% vergrössern, so dass sich für C_k ein Wert von 8 cm ergibt, behaftet mit einem Fehler von maximal 1,5 cm, d. h. die Grösse $C_0 + C_k$ beträgt (230 ± 2) cm. Es ergibt sich aus diesen Angaben im Proportionalitätsbereich eine Empfindlichkeit von

$$E_c = (3,5 \pm 0,1) \cdot 10^{-7} \frac{\Delta C}{C} / \text{Skt.}$$

Die Prüfung der gemachten Voraussetzung, nämlich der Darstellung $\Delta C_k = k \cdot \Delta l$, kann nun aber nicht durch die Messung der Ausschlagsänderungen ΔA selbst erfolgen, da ja die Empfindlichkeit bei ändernder Gesamtkapazität nicht konstant bleiben muss. Es wurde deshalb für diese Messung eine Kompensationsmethode gewählt, bei welcher die Gesamtkapazität konstant bleibt. Die Änderung des Zylinderkondensators wurde kompensiert durch eine entsprechende Änderung eines Plattenkondensators, und zwar in der Weise, dass die Änderung Δx des Plattenabstandes x immer von derselben Grösse war und von demselben x ausging. Die diesem Δx entsprechende Ausschlagsänderung wurde nun durch eine Änderung des Zylinderkondensators rückgängig gemacht und dabei das Verhältnis $\Delta l/\Delta x$ bestimmt bei verschiedenen Längen l des Zylinderkondensators. Dieses Verhältnis muss über einen bestimmten Bereich konstant sein, wenn unsere Voraussetzung richtig war. Die Resultate dieser Messung sind folgende:

Um die Genauigkeit der Messung zu steigern, wurde die Empfindlichkeit um ungefähr das Zehnfache herabgesetzt, wodurch es möglich war, zehnmal grössere Verschiebungen Δl und Δx zu verwenden.

l	4 cm	7 cm	10 cm	13 cm	16 cm	18 cm
$\Delta l/\Delta x$	1,87	1,88	1,885	1,875	2,035	2,08
\pm	0,02	0,02	0,02	0,02	0,03	0,03

Es ist daraus ersichtlich, dass die Beziehung $\Delta C_k = k \cdot \Delta l$ mit einem Fehler von 1% in k in der Umgebung von $l = 10$ cm zu Recht benutzt worden ist.

Es wäre noch interessant, zu wissen, ob der Fehler von 3% in der Bestimmung der Empfindlichkeit im wesentlichen durch die

Methode der Eichung bedingt ist, d. h. ob die Apparatur selbst bei einer genaueren Eichmethode eine genauere Empfindlichkeitsbestimmung zuliesse. Dies kann durch folgenden Versuch entschieden werden: Am Plattenkondensator C_p (vgl. Fig. 14) wird ein Metallstift S fest montiert, der vorerst elektrisch isoliert ist und dessen eines Ende in den freien Raum zwischen den beiden Platten hineinragt. Dadurch, dass nun dieser Stift geerdet wird, wird die wirksame Kapazität in genau definierter, wenn auch nicht angebbarer Weise geändert, so dass also hier ein mit grosser Genauigkeit reproduzierbares ΔC hergestellt werden kann.

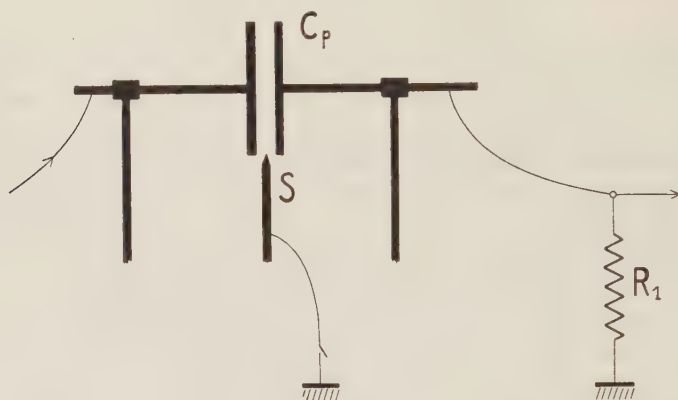


Fig. 14.

Dieses ΔC wurde so eingestellt, dass es bei der oben bestimmten Maximalempfindlichkeit einen Ausschlag von 32,5 Skalenteilen hervorrief, welcher durch viele Messungen an verschiedenen Stellen des Proportionalitätsbereiches als unbeschränkt reproduzierbar festgestellt wurde, so dass gesagt werden kann, dass die Unschärfe der Empfindlichkeitsbestimmung zum überwiegenden Teil den Mängeln der Eichmethode zuzuschreiben ist, die Apparatur also leistungsfähiger ist als die beschriebene Eichung.

Die Verwendung derselben Anordnung zur Bestimmung des Proportionalitätsbereiches ist angesichts der Genauigkeit dieser Methode zu empfehlen. Es sei hier eine zu diesem Zwecke aufgenommene Reihe von Ausschlägen wiedergegeben:

<i>Nullpunkt (S isoliert):</i>							
603,5	647	680	733	768,5	841	895,5	963
<i>Ausschlag (S geerdet):</i>							
27,0	29,5	31,5	32,5	32,5	32,5	32,5	32,5

9. Phasenempfindlichkeit.

Wie schon angedeutet wurde, ist nun allerdings die gemessene Kapazitätsempfindlichkeit keine Apparaturkonstante, da sie ja je nach der Schaltung der Messkapazität eine ganz verschiedene ist — wir werden sehen, dass nicht einmal die gemessene Maximalempfindlichkeit eine Konstante ist, sondern mit wachsender Grösse der Messkapazität stark abnimmt. Als Grundlage für die Wahl der geeigneten Schaltung kann deshalb die Kapazitätsempfindlichkeit nicht verwendet werden; die Apparaturkonstante, die diesen Zweck erfüllt, kann nur die Phasenempfindlichkeit sein, wie ja nach der Art der Konstruktion der Apparatur zu erwarten ist. Diese Phasenempfindlichkeit ist definiert als $E_\varphi = \frac{\Delta\varphi}{\Delta A}$, wo $\Delta\varphi$ die auf irgend eine Weise erzeugte Änderung der Phasendifferenz zwischen den beiden Zweigen der Gesamtschaltung bedeutet. Da dieses $\Delta\varphi$ einer direkten Messung nicht zugänglich ist, kann die Phasenempfindlichkeit nur auf dem Wege über ein messbar herstellbares ΔC bestimmt werden, wobei nach der Beziehung

$$E_\varphi = \frac{1}{\Delta A} \cdot \Delta\varphi = \frac{1}{\Delta A} \cdot \frac{d\varphi}{dC} \cdot \Delta C$$

die differentielle Änderung des Phasenwinkels mit der Messkapazität bekannt sein muss. Wählen wir speziell die schon verwendete Schaltung für C , für welche die Kapazitätsempfindlichkeit als $E_c = \frac{1}{\Delta A} \cdot \frac{\Delta C}{C}$ gemessen wurde, so ergibt sich die Beziehung

$$E_\varphi = E_c \cdot \left(C \cdot \frac{d\varphi}{dC} \right), \quad . . \quad (1)$$

d. h. es bleibt nur noch die Grösse der Funktion $C \cdot \frac{d\varphi}{dC}$ zu bestimmen.

Um die Art der Abhängigkeit des Phasenwinkels von der Messkapazität C zu zeigen, müssen wir auf die Darstellung der Gesamtschaltung (Fig. 12) zurückgreifen. Es soll die durch eine infinitesimale Änderung dC der Messkapazität C hervorgerufene Änderung $d\varphi$ der Phasendifferenz $\varphi = \varphi_{\text{II}} - \varphi_{\text{I}}$ ermittelt werden, wo φ_{I} und φ_{II} die Phasenwinkel der auf die Gitter der Koinzidenzschaltung K auftreffenden Impulsreihen bedeuten, wobei es nicht von Bedeutung ist, dass diese Impulsreihen keine sinusförmigen Spannungen sind, da ja die Multivibratoren zu den Grössen φ_{I} und φ_{II} nur je eine Konstante beitragen. Da zudem durch eine kleine Änderung von C der Phasenwinkel φ_{I} keine Änderung erleidet, können wir

unsere Betrachtung auf die Grösse von φ_{II} beschränken. Wir wollen φ_{II} in folgende Summanden zerlegen:

$$\varphi_{II} = \varphi_{V_I} + \varphi_C + \varphi_{V_{II}} + \varphi_{M_{II}} + \text{Const.},$$

wo die einzelnen Glieder jeweils den Winkel angeben, um welchen die Phase in der im Index bezeichneten Schaltung gedreht wird; die Konstante stellt die Relation zu φ_I her. Eine Änderung dC der Messkapazität bewirkt nun vor allem eine direkte Änderung von φ_C , ausserdem aber auch eine Änderung der Amplitude der Sinusspannung, wodurch die übrigen Glieder ebenfalls geändert werden. Die Endröhre des Verstärkers V_I ist so dimensioniert, dass die Belastung durch die Schaltung C klein ist, so dass die Amplitudenänderung an dieser Stelle nicht in Betracht fällt. Es kann also φ_{V_I} als konstant angesehen werden. Dagegen werden $\varphi_{V_{II}}$ und vor allem $\varphi_{M_{II}}$ mit der Amplitudenänderung an R_1 eine Änderung erfahren, deren Grösse gegenüber der Änderung von φ_C in Betracht fallen könnte. Wir müssen demnach den gesamten Phasenwinkel φ_{II} in zwei Terme aufspalten, wobei ein Term (φ_C) direkt von C abhängig ist, während der zweite ($\varphi_{V_{II}} + \varphi_{M_{II}}$) nur auf dem Umweg über die Amplitude a der Sinusspannung an R_1 von C abhängt; ein dritter konstanter Term stellt wieder die Relation zu φ_I her:

$$\varphi_{II} = \varphi'(C) + \varphi''(a(C)) + \text{Const.}$$

Der gesuchte Differentialquotient wird also

$$\frac{d\varphi_{II}}{dC} = \frac{d\varphi}{dC} = \frac{d\varphi'}{dC} + \frac{d\varphi''}{da} \cdot \frac{da}{dC}. \quad (2)$$

Es bedeutet nun keine Schwierigkeit, die Grössen $\frac{d\varphi'}{dC}$ und $\frac{da}{dC}$ zu berechnen; dagegen ist natürlich $\frac{d\varphi''}{da}$ einer Bestimmung nicht leicht zugänglich. Es ist jedoch an Hand von Fig. 1a/b eine grobe Schätzung der Grösse $\frac{d\varphi''}{da/a}$, d. h. der Änderung des Phasenwinkels im Multivibrator mit der relativen Änderung der Eingangsspannung möglich. Diese Abschätzung ergibt, dass der zweite Term von $\frac{d\varphi}{dC}$ höchstens den Betrag von einigen Prozenten des ersten Terms erreichen kann, so dass es gegeben erscheint, die Phasempfindlichkeit vorerst nur auf Grund des ersten Terms zu berechnen, um nachher mit Hilfe dieser Näherung eine Korrektur zu berechnen, welche den Einfluss des zweiten Terms wiedergibt.

Wir setzen deshalb vorerst $\frac{d\varphi}{dC} = \frac{d\varphi'}{dC}$, welche Grösse nun zu berechnen ist. Die Grösse $d\varphi'$ bedeutet dabei nach unserer Definition die durch die Kapazitätsänderung dC direkt bewirkte Phasenverschiebung, also die Verschiebung zwischen den Sinusspannungen ε_0 und ε in Fig. 15. Da die Belastung der Schaltung am Ausgang

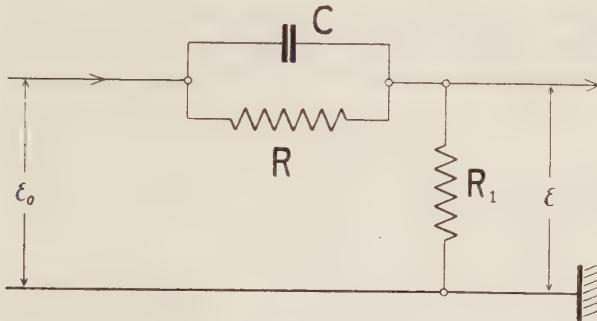


Fig. 15.

klein ist (Belastungswiderstand $\approx 10^3 \cdot R_1$), lässt sich die Spannung in dieser Schaltung symbolisch ausdrücken als

$$\varepsilon = \varepsilon_0 \frac{R_1 + j\omega R R_1 C}{R + R_1 + j\omega R R_1 C}, \quad (3)$$

woraus sich die Tangente des Phasenwinkels zwischen ε und ε_0 berechnet zu:

$$\operatorname{tg} \varphi = \frac{\omega R^2 C}{R + R_1 + \omega^2 R^2 R_1 C^2} = x.$$

Die differentielle Änderung von φ mit C ergibt sich daraus leicht auf folgende Weise:

$$\frac{d\varphi}{dC} = \frac{d \operatorname{arctg} x}{dC} = \frac{d \operatorname{arctg} x}{dx} \frac{dx}{dC} = \frac{dx}{dC} \cdot \frac{1}{1+x^2},$$

wo $x = \operatorname{tg} \varphi$ einzusetzen ist, so dass sich, wenn wir gleich die für die Empfindlichkeitsbestimmung zu verwendende Grösse anschreiben, folgendes Resultat zeigt:

$$C \cdot \frac{d\varphi}{dC} = \omega R^2 C \cdot \frac{R + R_1 - \omega^2 R^2 R_1 C^2}{(R + R_1 + \omega^2 R^2 R_1 C^2)^2} \cdot \frac{1}{1 + \left(\frac{\omega R^2 C}{R + R_1 + \omega^2 R^2 R_1 C^2} \right)^2}. \quad (4)$$

Um vorerst einen Überblick über den Verlauf einer solchen Kurve zu erhalten, greifen wir den Bereich heraus, wo die beiden

Summenglieder R_1 und $\omega^2 R^2 R_1 C^2$ gegenüber R vernachlässigt werden können, so dass sich folgende einfache Darstellung ergibt:

$$C \cdot \frac{d\varphi}{dC} = \omega R C \cdot \frac{1}{1 + (\omega R C)^2}. \quad (5)$$

Diese Funktion erreicht für feste Werte von ω und C offensichtlich ein Maximum bei einem optimalen R , und zwar erhält man durch Differenzieren nach R die Extremumsbedingung $\omega R C = 1$, d. h. die Funktion erreicht bei einem optimalen Wert

$$R_{\text{opt}} = \frac{1}{\omega C} \quad (6)$$

das Maximum

$$C \cdot \frac{d\varphi}{dC} (R_{\text{opt}}) = 0,5. \quad (7)$$

Ist nun die Phasenempfindlichkeit E_φ eine Apparaturkonstante, so muss die Kapazitätsempfindlichkeit E_c nach Gleichung (1) an eben dieser Stelle ein Minimum werden; die experimentelle Feststellung einer optimalen Kapazitätsempfindlichkeit bei einem R_{opt} findet damit eine einfache Deutung.

Die Gleichungen (5) bis (7) gelten streng für $R_1 = 0$, und zwar ist in dieser Grenze die grösste Empfindlichkeit E_c dann erreicht, wenn die Wechselstromwiderstände von R und C einander gleich sind (6). Physikalisch sind diese einfachen Beziehungen bei kleinen Kapazitäten zu verwirklichen; mit wachsendem C nehmen die Abweichungen von (4) sehr rasch zu und das Maximum von $C \cdot \frac{d\varphi}{dC}$ sinkt unter den Grenzwert 0,5, so dass E_c abnimmt.

Fig. 16 gibt einen Überblick über den Verlauf der Gleichung (4) als Funktion von R , für drei Kapazitätswerte berechnet bei $R_1 = 1000 \, \Omega$ und $\omega = 5 \cdot 10^4$ Hz. Die punktiert dargestellte Kurve gibt den Verlauf von $\left(C \cdot \frac{d\varphi}{dC}\right)_{\text{max}}$ als Funktion von R wieder; weiter ist zur Bestimmung von R_{opt} dessen Abhängigkeit von C dargestellt, ebenso wie zur Abschätzung der Empfindlichkeit der Verlauf von $\left(C \cdot \frac{d\varphi}{dC}\right)_{\text{max}}$ mit C .

Wir haben nun $C \cdot \frac{d\varphi}{dC}$ zu berechnen an der Stelle, an welcher E_c gemessen wurde, d. h. unter folgenden Bedingungen: Die Frequenz des Generators wurde mit Hilfe eines Tongenerators auf 8000 Hertz eingestellt, so dass $\omega = (5,03 \pm 0,03) \cdot 10^4$ Hertz war. Weiter war $R = 8 \cdot 10^4 \, \Omega$ und $R_1 = 10^3 \, \Omega$, beide mit Fehlern von einem Pro-

mille behaftet. Die Messkapazität war nach den früheren Betrachtungen $(256 \pm 2) \cdot 10^{-12}$ Farad. Daraus ergibt sich nach (4):

$$C \cdot \frac{d\varphi}{dC} = 0,49 \pm 0,01$$

und

$$E_{\varphi} = (1,7 \pm 0,05) \cdot 10^{-7},$$

welche Grösse nun im Gegensatz zu E_c eine Apparaturkonstante, d. h. von der speziellen Schaltung der Messkapazität unabhängig ist. Diese Unabhängigkeit wird noch bewiesen werden.

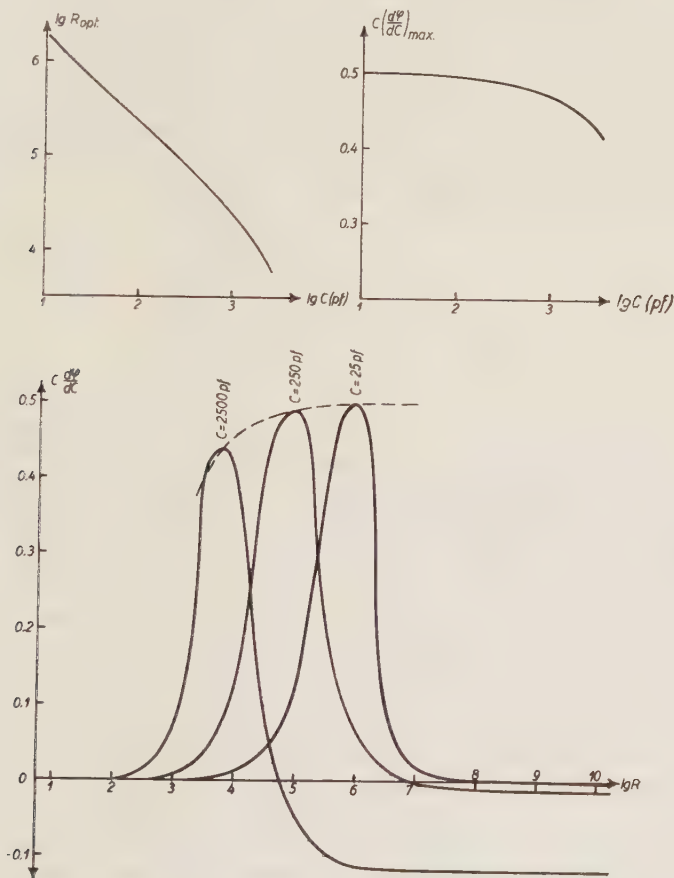


Fig. 16.

Als Voraussetzung für die obige Bestimmung von E_{φ} wurde angenommen, dass in Gleichung (2) der zweite Term klein sei gegenüber dem ersten Term. Dies muss noch gezeigt werden. Wir

wollen erst die Grösse $\frac{1}{a} \cdot \frac{da}{dC}$, das ist die differentielle Änderung der relativen Amplitude der Sinusspannung mit der Messkapazität, berechnen. Diese Änderung da/a entsteht in der Schaltung der Messkapazität selbst und ist gleich der Änderung des Verhältnisses $\varepsilon/\varepsilon_0$ (Fig. 15). Weiter ist eine zusätzliche Amplitudenänderung im Verstärker V_{II} zu erwarten. Bei der Aufspaltung der zu bestimmenden Grösse $\frac{d\varphi''(a(C))}{dC}$ in die Faktoren $\frac{d\varphi''(a)}{da}$ und $\frac{da(C)}{dC}$ können wir nun aber diese weitere Amplitudenänderung in V_{II} bereits als Phasenverschiebung auffassen und zum ersten Term hinzuschlagen, so dass für den zweiten Term nur die Amplitudenänderung $d\varepsilon/\varepsilon_0$ bleibt. Physikalisch bedeutet dies einfach, dass die Grösse $\frac{d\varphi''}{da}$ gemessen werden muss, indem eine bekannte Amplitudenänderung nicht erst am Eingang von M_{II} , sondern schon am Eingang von V_{II} erzeugt wird. Die Berechnung ergibt nach dieser Aufspaltung folgendes: Nach (3) ist

$$a = |\varepsilon| = |\varepsilon_0| \cdot \frac{R_1 + \omega R R_1 C}{R + R_1 + \omega R R_1 C},$$

somit wird

$$\frac{1}{a} \cdot \frac{da}{dC} = \frac{\omega R^2}{(1 + \omega R C) \cdot (R + R_1 + \omega R R_1 C)}. \quad (8)$$

Der Betrag dieser Grösse bei den Werten $\omega = 5 \cdot 10^4$, $R = 8 \cdot 10^4$, $R_1 = 10^3$ und $C = 2,5 \cdot 10^{-10}$ Farad wird gleich $2 \cdot 10^9$ Farad $^{-1}$. Dieser Wert ändert mit R nur langsam im Vergleich zu $\frac{d\varphi}{dC}$; die Funktion (8) durchläuft kein Maximum im Bereiche positiver Werte von R .

Weiter ist noch die Grösse $a \cdot \frac{d\varphi''}{da}$ zu bestimmen, was experimentell geschehen kann, wenn wir aufspalten in die beiden Differentialquotienten $\frac{d\varphi''}{dA}$ und $a \cdot \frac{dA}{da}$, wo $\frac{d\varphi''}{dA}$ nichts anderes ist als die Phasenempfindlichkeit $E_\varphi = \frac{\Delta\varphi}{\Delta A}$, da wir uns ja im Proportionalitätsbereich bewegen; diese ist aber näherungsweise bekannt. Es bleibt also die experimentelle Bestimmung von $\frac{\Delta A}{\Delta a/a}$, d. h. des Ausschlages des Galvanometers G für eine relative Amplitudenänderung am Eingang von V_{II} , gemessen bei der maximalen Empfindlichkeit der Apparatur. Diese einfache Messung ergab den Wert von $9 \cdot 10^4$ Skt. Dieser Wert gilt für eine Ausgangsamplitude von ca. 50 Volt; es ist nach Fig. 1 klar, dass bei kleineren

Amplituden der Wert von $\frac{dA}{da}$ zunimmt und sodann die folgenden Betrachtungen nicht gültig sein können.

Damit sind alle zur Bestimmung der Korrektur der Phasenempfindlichkeit notwendigen Grössen bekannt, und es wird

$$\frac{d\varphi''}{dC} = E_{\varphi} \cdot \left(a \cdot \frac{\Delta A}{\Delta a} \right) \cdot \left(\frac{1}{a} \cdot \frac{da}{dC} \right) = 3,2 \cdot 10^{-7},$$

oder bei $C = 2,56 \cdot 10^{-10}$

$$C \cdot \frac{d\varphi}{dC} = C \cdot \frac{d\varphi'}{dC} + C \cdot \frac{d\varphi''}{dC} = 0,49 + 0,008,$$

d. h. die Korrektur durch die Amplitudenänderung liegt gerade noch innerhalb des für die Näherungsgrösse $C \cdot \frac{d\varphi'}{dC}$ bestimmten Fehlers ($\pm 0,01$). Wir dürfen uns deshalb mit dieser näherungsweisen Bestimmung der Korrektur begnügen und für $C \cdot \frac{d\varphi}{dC}$ den neuen Wert $0,5 \pm 0,01$ angeben, so dass wir als endgültigen Wert für die Phasenempfindlichkeit erhalten

$$\underline{E_{\varphi} = (1,75 \pm 0,05) \cdot 10^{-7} .}$$

Da mit variierendem R die Funktion $C \cdot \frac{d\varphi}{dC}$ rascher ändert als die Korrektur, gilt diese Berechnung nur für Messungen in der Nähe des optimalen Widerstandes.

Es ist nun auf Grund dieser Phasenempfindlichkeit möglich, die Kapazitätsempfindlichkeit für eine beliebige Schaltung der Messkapazität nach der Beziehung (1) zu berechnen, sofern die gemachten Voraussetzungen berücksichtigt werden, da dann diese Phasenempfindlichkeit konstant bleibt. Anhand der Kurve aus Fig. 16 ist deshalb vorauszusagen, dass die maximal erreichbare Kapazitätsempfindlichkeit bei der verwendeten Schaltung für grössere Kapazitätswerte C stark abnimmt, für kleinere C dagegen konstant auf $2 \cdot E_{\varphi}$ bleibt, also auf ungefähr der Empfindlichkeit, welche bei $C = 250$ pF bestimmt wurde. Es wäre interessant, diese Kapazitätsempfindlichkeit für Kapazitäten von einigen Pikofarad zu beweisen, was mit Hilfe der bereits verwendeten Mittel möglich ist, wenn auch natürlich mit einiger Einbusse an Genauigkeit. Zu dieser Empfindlichkeitsbestimmung muss jedoch eine Kapazität von der Grösse einiger Zentimeter mit einiger Genauigkeit bekannt sein, wofür ein Kreisplattenkondensator mit einem Plattenradius von 5 cm bei Plattenabständen von 1 bis 2 cm verwendet wurde.

10. Die Kapazität des Plattenkondensators.

Die Kapazität dieses Kondensators im Bereiche relativ grosser Plattenabstände, wo die Berechnung der Korrekturen für die Randwirkung versagt, lässt sich nämlich mittels unseres bekannten ΔC_k ermitteln. Diese Bestimmung gestaltet sich mit Hilfe unserer Apparatur folgendermassen. Wir schalten als Messkapazität C drei Kondensatoren parallel, nämlich den Zylinderkondensator C_k , den Plattenkondensator C_p und eine Kapazität C_0 von beliebiger Grösse. Nach Ermittlung des optimalen Widerstandes R werden folgende Messungen durchgeführt: Bei verschiedenen Plattenabständen x des Plattenkondensators C_p wird eine Änderung Δx des jeweiligen Abstandes durch eine Änderung Δl der Länge des Zylinderkondensators C_k so kompensiert, dass der Ausschlag der Apparatur gerade Null bleibt. Dies bedeutet, dass die Änderungen der betreffenden Kondensatoren von gleicher Grösse sind; es gilt also unabhängig von der Gesamtkapazität:

$$\Delta C_p = \Delta C_k = k \cdot \Delta l. \quad (9)$$

Stellen wir nun die Kapazität des Kreisplattenkondensators mit der Korrektur für die Randwirkung in der bekannten Weise dar

$$C_p = \frac{R^2}{4x} \cdot (1 + p(x)),$$

wo $p(x)$ eine Potenzreihe darstellt, so können wir ΔC_p als Funktion von Δx berechnen und erhalten:

$$\Delta C_p = \left\{ -\frac{R^2}{4x^2} \cdot (1 + p(x)) + \frac{R^2}{4x} \cdot \frac{dp(x)}{dx} \right\} \cdot \Delta x,$$

gültig für genügend kleine Werte von Δx . Diesen Ausdruck setzen wir in (9) ein und erhalten so, wenn wir noch setzen:

$$\frac{\Delta l}{\Delta x} = \frac{1}{k} \cdot \frac{dC_p}{dx} = q(x) \quad (10)$$

die Beziehung

$$\frac{dp(x)}{dx} - \frac{1}{x} \cdot p(x) - \left\{ \frac{1}{x} + \frac{4k}{R^2} \cdot q(x) \cdot x \right\} = 0, \quad (11)$$

eine allgemeine lineare Differentialgleichung erster Ordnung in $p(x)$ mit variablen Koeffizienten.

Der wesentliche Ausdruck in dieser Gleichung ist für uns natürlich die Funktion $q(x)$, deren Verlauf mit dem Plattenabstand x experimentell zu bestimmen ist, wobei die Bedingung gilt, dass Δx immer möglichst klein gewählt werden muss. Die Messungen

wurden deshalb mit Werten für Δx ausgeführt, welche zwischen 0,01 und 0,05 cm liegen, und ergaben folgende Resultate:

Alle für $q(x)$ angegebenen Werte sind definitionsgemäss negativ, vgl. (9) und (10); der Einfachheit halber sind sie durchgehend ohne Vorzeichen aufgeführt.

x	0,8 cm	1,2 cm	1,6 cm	2,0 cm	2,4 cm
$q(x)$	16,59	7,87	4,63	2,94	1,89
\pm	0,25	0,05	0,04	0,03	0,02

Es ist nun naheliegend, diese Werte zu vergleichen mit den Werten für $q(x)$, wie sie sich theoretisch ergeben, wenn man C_p als bekannt annimmt, und zwar können wir für C_p näherungsweise die Grösse $\frac{R^2}{4x}$ oder aber eine der Funktionen als Grundlage des Vergleichs wählen, welche die Kapazität des Plattenkondensators mit Einbeziehung der Randwirkung darstellen, jedoch nur für kleine Plattenabstände gültig sind und die Feldstreuung in der Umgebung nicht berücksichtigen. Zu diesem Zwecke sei die KIRCHHOFF'sche Darstellung benutzt, und zwar die einfachere Form

$$C_p^* = \frac{R^2}{4x} + \frac{R}{4\pi} \cdot \left(\ln \frac{16 R \pi}{x} - 1 \right). \quad (12)$$

Die Funktion $q(x)$ berechnet sich aus (10) im ersten Fall zu $-\frac{R^2}{4kx^2}$, während die KIRCHHOFF'sche Darstellung

$$q^*(x) = - \left\{ \frac{R^2}{4kx^2} + \frac{R}{4k\pi x} \right\} \quad (13)$$

ergibt; die numerischen Werte sind zusammen mit den experimentellen Ergebnissen in der nachfolgenden Tabelle aufgeführt.

x	$\frac{R^2}{4kx^2}$	$q^*(x)$	$q(x)_{\text{exp}}$
0,8	15,26	16,05	16,59
1,2	6,78	7,30	7,87
1,6	3,82	4,21	4,63
2,0	2,44	2,76	2,94
2,4	1,695	1,953	1,89

Es ist aus dieser Tabelle sofort ersichtlich, dass die experimentellen Werte näher an den Werten von $q^*(x)$ liegen. Das gegebene Vorgehen ist deshalb, die KIRCHHOFF'sche Darstellung als Näherungslösung der Gleichung (11) zu betrachten und aus den experi-

mentellen Werten von $q(x)$ eine Korrektur zu berechnen. Wir schreiben also

$$q(x) = q^*(x) + q'(x); \quad (14)$$

wo $q'(x)$ den Unterschied der experimentellen Werte zu $q^*(x)$ bedeutet.

Setzen wir nun in der Differentialgleichung (11) die Darstellung (14) für $q(x)$ ein, so zeigt die Integration, dass sich die Lösung $p(x)$ in zwei entsprechende Terme aufspalten lässt:

$$p(x) = p^*(x) + p'(x), \quad (15)$$

wo $p^*(x)$ natürlich die KIRCHHOFF'sche Darstellung für $p(x)$ ergeben muss, nämlich

$$p^*(x) = \frac{x}{\pi R} \cdot \left(\ln \frac{16 R \pi}{x} - 1 \right),$$

was leicht zu verifizieren ist. Für $p'(x)$ bleibt dann folgender Ausdruck:

$$p'(x) = + \frac{4 k x}{R^2} \int_{x_0}^x q'(x) dx.$$

Um diese Integration durchzuführen, ist $q'(x)$ in einer Potenzreihe darzustellen, welche die experimentellen Werte wiedergibt. Beschränken wir uns auf zwei Glieder, so finden wir die einfache Darstellung:

$$q'(x) = -x + 0,455 x^2.$$

Die Werte, die diese Kurve durchläuft, ergeben mit den experimentellen Werten folgenden Vergleich:

x	0,8 cm	1,2 cm	1,6 cm	2,0 cm	2,4 cm
q'_{theor}	-0,509	-0,545	-0,435	-0,180	+0,175
q'_{exp}	-0,54	-0,57	-0,42	-0,18	+0,063
\pm	0,25	0,05	0,04	0,03	0,02

Die Tabelle zeigt, dass die angegebene Potenzreihe den experimentellen Werten bis zu einem Plattenabstand von 2 cm mit genügender Genauigkeit folgt, dagegen bei 2,4 cm zu stark abweicht; dieser Bereich wird deshalb im Weiteren ausgeschlossen.

Die Integration für $p'(x)$ ist nun sofort durchgeführt; beachtet man, dass die Korrektur für sehr kleine x -Werte Null werden muss, so ergibt sich

$$p'(x) = -\frac{1}{R^2} \cdot (1,28 \ x^3 - 0,388 \ x^4)$$

oder nach (12) und (15)

$$C_p = C_p^* - (0,32 \ x^2 - 0,097 \ x^3). \quad (16)$$

Die Darstellung ist für den verwendeten Plattenkondensator in der einmal gewählten Aufstellung bis $x = 2$ cm gültig.

Die folgende Tabelle gibt einen Vergleich zwischen den Kapazitätswerten C_p und den beiden theoretischen Näherungen.

x	$\frac{R}{4 \ x}$	C_p^*	C_p
0,4	15,63 cm	17,80 cm	(17,75) cm
0,8	7,81 cm	9,70 cm	9,54 $\pm 0,05$ cm
1,2	5,21 cm	6,94 cm	6,64 $\pm 0,04$ cm
1,6	3,906 cm	5,520 cm	5,10 $\pm 0,1$ cm
2,0	3,125 cm	4,651 cm	4,147 $\pm 0,15$ cm

11. Empfindlichkeit bei sehr kleinen Kapazitäten.

Es ist nun leider auch bei Kenntnis der wahren Kapazität des Plattenkondensators nicht möglich, mit den vorhandenen Mitteln die beste erreichbare Empfindlichkeit bei kleinen Messkapazitäten zu bestimmen, da diese Bestimmung die Herstellung eines entsprechend kleinen C voraussetzen würde, was bei dem vorhandenen Plattenkondensator nicht mit der notwendigen Genauigkeit möglich ist. Da wir jedoch die Maximalempfindlichkeit für grössere Kondensatoren kennen, kann es uns genügen, bei beliebig unempfindlicherer Apparatur eine Empfindlichkeitsbestimmung vorzunehmen — vorausgesetzt, dass die Herabsetzung der Empfindlichkeit auf eine Weise geschieht, welche die Funktion der Apparatur nicht prinzipiell beeinflusst. Gelingt es uns, diese neue Empfindlichkeit bei Verwendung grösserer und kleinerer Messkapazitäten mit hinreichend genauer Übereinstimmung zu erhalten, so darf daraus geschlossen werden, dass die genannte Maximalempfindlichkeit $E_c = 3,5 \cdot 10^{-7}$ auch für Messungen an sehr kleinen Kapazitäten erreicht wird.

Eine solche Herabsetzung der Maximalempfindlichkeit um ungefähr das Hundertfache kann erreicht werden durch Ausschalten einer Verstärkerstufe von V_{III} . Durch geeignete Wahl der Kopplungselemente der Schaltungen K und E wird erreicht, dass der Proportionalitätsbereich bei der gewünschten Empfindlichkeit auftritt.

Das Prinzip dieser Messungen ist folgendes: Die Kenntnis der Grösse des Plattenkondensators C_p genügt natürlich nicht zur Berechnung des zur Empfindlichkeitsbestimmung verwendeten $\Delta C/C$, da in der Grösse C auch die verteilten Kapazitäten \bar{C} der Schaltung der Messkapazität eingehen; die Kapazität C setzt sich also aus zwei Summanden zusammen, von welchen nur der eine bekannt ist:

$$C = C_p + \bar{C}. \quad (17)$$

Es gibt jedoch auch hier eine Näherungsmethode, welche mit Erfolg angewendet werden kann, solange C nicht die Grösse von C_p erreicht. Betrachten wir nämlich die Darstellung der Phasempfindlichkeit

$$E = \frac{\Delta \varphi}{\Delta A} = \frac{d\varphi}{dC} \cdot \frac{\Delta C}{\Delta A} = \frac{d\varphi}{dC} \cdot \frac{dC}{dx} \cdot \frac{\Delta x}{\Delta A}, \quad (18)$$

so ist ersichtlich, dass die Grösse C einzig im Faktor $\frac{d\varphi}{dC}$ mit beiden Summanden eingeht, während $\frac{dC}{dx}$ eine Funktion von C_p allein ist, da ja nach der Art, wie C_p bestimmt wurde, dieses alle Grössen enthält, welche sich mit x ändern. Es ist also nach (10) und (14):

$$\frac{dC}{dx} = \frac{dC_p}{dx} = k \cdot (q^*(x) + q'(x)_{\text{theor}}).$$

Der Faktor $\frac{d\varphi}{dC}$ wird für Kapazitäten der Grössenordnung von C_p in weiter Umgebung des optimalen Widerstandes R gleich der vereinfachten Darstellung (5), also

$$\frac{d\varphi}{dC} = \omega R \cdot \frac{1}{1 + (\omega RC)^2} \quad (19)$$

(die Korrektur für die Amplitudenänderung darf hier vernachlässigt werden). Betrachten wir diesen Ausdruck auf seine Veränderlichkeit mit der Variablen C hin, so existieren offenbar zwei recht unterschiedliche Bereiche, nämlich ein Bereich, nach oben begrenzt durch $\omega RC < 1$, in welchem $\frac{d\varphi}{dC}$ relativ schwach von C abhängig ist, und ein Bereich $\omega RC > 1$, worin $\frac{d\varphi}{dC}$ stark von C

abhängig wird. Es muss deshalb möglich sein, mit einem nur näherungsweise bekannten C im ersten Bereich eine Empfindlichkeit zu bestimmen, deren relativer Fehler kleiner ist als derjenige von C . Andererseits lässt sich umgekehrt mit relativ grosser Genauigkeit C bestimmen, wenn wir aus einer im zweiten Bereich gemessenen Kapazitätsempfindlichkeit durch Vergleich mit der im ersten Bereich bestimmten Phasenempfindlichkeit die Grösse von $\frac{d\varphi}{dC}$ bestimmen. Mathematisch ausgedrückt bedeutet dies folgenden Vorgang:

a) Zu einer bestimmten Kapazität C , deren Näherungswert C_p bekannt ist, wird ein Widerstand R so gewählt, dass $\omega RC < 1$. Nun wird der Ausschlag ΔA der Apparatur für eine Verschiebung Δx des Plattenabstandes von C_p gemessen und daraus die Phasenempfindlichkeit berechnet:

$$E_{\varphi}^{(1)} = \left(\frac{d\varphi}{dC} \right)^{(1)} \cdot \left| \frac{dC}{dx} \right| \cdot \left| \frac{\Delta x}{\Delta A} \right| \quad (20)$$

$E_{\varphi}^{(1)}$ ist ein Näherungswert, dessen Fehler aber kleiner ist wie der Fehler von C .

b) Nun wird der Widerstand R bis zu einem Wert R' erhöht, wo $\omega R' C > 1$ wird. Dann wird ein neuer Quotient $\left(\frac{\Delta x}{\Delta A} \right)'$ bestimmt, woraus sich berechnet:

$$\left(\frac{d\varphi}{dC} \right)^{(2')} = \frac{E_{\varphi}^{(1)}}{\left| \frac{dC}{dx} \right| \cdot \left| \frac{\Delta x}{\Delta A} \right|'}. \quad (21)$$

Nach (19) ergibt sich daraus ein neuer Näherungswert für C :

$$C^{(2)} = \frac{1}{\omega R'} \sqrt{\frac{\omega R'}{\left(\frac{d\varphi}{dC} \right)^{(2')} - 1}}. \quad (22)$$

c) Diese neue Näherung ist wiederum besser als die Näherung $\left(\frac{d\varphi}{dC} \right)^{(2')}$, so dass aus ihr eine bessere Näherung als $\left(\frac{d\varphi}{dC} \right)^{(1)}$, berechnet werden kann:

$$\left(\frac{d\varphi}{dC} \right)^{(2)} = \omega R \cdot \frac{1}{1 + (\omega R C^{(2)})^2}. \quad (23)$$

Aus diesem Wert lässt sich eine neue Näherung für E_{φ} berechnen, deren Fehler nun wesentlich kleiner ist als der Fehler von $E_{\varphi}^{(1)}$:

$$E_{\varphi}^{(2)} = \left(\frac{d\varphi}{dC} \right)^{(2)} \cdot \left| \frac{dC}{dx} \right| \cdot \left| \frac{\Delta x}{\Delta A} \right|. \quad (24)$$

d) Dieser Wert wird verglichen mit einer Bestimmung von E_φ bei $C = 250$ cm. Stimmen diese Werte überein, so ist gezeigt, dass die zur Berechnung von $\frac{d\varphi}{dC}$ verwendete Beziehung (19) für Kapazitäten von einigen Zentimetern gültig ist, dass also auch bei solchen Kapazitäten eine Kapazitätsempfindlichkeit $E_c = 2 \cdot E_\varphi$ erreicht werden kann.

Es ist zu beachten, dass die Werte von R und R' nicht sehr verschieden sein dürfen, da sonst in (17) der Wert von \bar{C} nicht mehr als konstant betrachtet werden kann. Um diesen Fehler möglichst zu vermeiden, wurden die Werte R und R' durch Serie- und Parallelschaltung ein und derselben Widerstände hergestellt. Um aber gleichzeitig eine Kontrolle für die Konstanz der Grösse \bar{C} zu gewinnen, wurden die Messungen je an drei verschiedenen Kapazitätswerten C_p vorgenommen. Die Resultate dieser Messungen sind, nach dem genannten Vorgehen geordnet und im praktischen Maßsystem gerechnet:

a) $R = 1,75 \cdot 10^6$.

x	C_p	$\left \frac{\Delta x}{\Delta A} \right $	$E_\varphi^{(1)}$
1,2	$(7,38 \pm 0,04) \cdot 10^{-12}$	$(0,51 \pm 0,025) \cdot 10^{-4}$	$(1,76 \pm 0,08) \cdot 10^{-5}$
1,6	$(5,66 \pm 0,11) \cdot 10^{-12}$	$(0,71 \pm 0,03) \cdot 10^{-4}$	$(1,65 \pm 0,07) \cdot 10^{-5}$
2,0	$(4,61 \pm 0,17) \cdot 10^{-12}$	$(1,08 \pm 0,07) \cdot 10^{-4}$	$(1,71 \pm 0,12) \cdot 10^{-5}$

b) Aus a) ergibt sich ein mittlerer Näherungswert $E_\varphi^{(1)} = (1,71 \pm 0,09) \cdot 10^{-5}$. Damit ergeben sich bei $R' = 5 \cdot 10^6$ folgende Resultate:

x	$\left \frac{\Delta x}{\Delta A} \right '$	$C^{(2)}$	$\bar{C}^{(2)} = C^{(2)} - C_p$
1,2	$(0,680 \pm 0,03) \cdot 10^{-4}$	$(8,51 \pm 0,26) \cdot 10^{-12}$	$(1,13 \pm 0,30) \cdot 10^{-12}$
1,6	$(0,744 \pm 0,03) \cdot 10^{-4}$	$(6,42 \pm 0,19) \cdot 10^{-12}$	$(0,76 \pm 0,22) \cdot 10^{-12}$
2,0	$(0,956 \pm 0,04) \cdot 10^{-4}$	$(5,54 \pm 0,17) \cdot 10^{-12}$	$(0,93 \pm 0,17) \cdot 10^{-12}$

c) Der letzte Wert, welcher die Grösse der verteilten Kapazitäten angibt, sollte hier als Konstante erscheinen; um weiter zu rechnen, können wir deshalb \bar{C} bei allen drei Werten von $C^{(2)}$ gleichsetzen, und zwar nehmen wir den höchsten Wert $(1,13 \cdot 10^{-12})$, da unsere Näherung natürlich ein zu kleines \bar{C} ergeben muss.

Indem wir also setzen $C^{(2)} = C_p + 1,13 \cdot 10^{-12}$, berechnen wir nach (23) $\left(\frac{d\varphi}{dC}\right)^{(2)}$ und nach (24) $E_\varphi^{(2)}$, was folgende Resultate ergibt:

x	$C^{(2)}$	$E_\varphi^{(2)}$
1,2	$(8,51 \pm 0,26) \cdot 10^{-12}$	$(1,60 \pm 0,07) \cdot 10^{-5}$
1,6	$(6,79 \pm 0,20) \cdot 10^{-12}$	$(1,52 \pm 0,06) \cdot 10^{-5}$
2,0	$(5,74 \pm 0,18) \cdot 10^{-12}$	$(1,58 \pm 0,1) \cdot 10^{-5}$

Die mittlere Empfindlichkeit ergibt sich also zu $E_\varphi^{(2)} = (1,57 \pm 0,08) \cdot 10^{-5}$. Die Näherungswerte konvergieren nicht sehr gut, so dass dieser Wert noch nicht als gute Näherung angesprochen werden kann. Dagegen können durch einfache Rechnung bessere Werte gewonnen werden, indem der ganze Weg von Gleichung (21) an nochmals zurückgelegt wird mit neuen Indices. Die Rechnung ergibt, dass sich $E_\varphi^{(3)}$ und $E_\varphi^{(4)}$ nur noch um 2% unterscheiden, so dass uns $E_\varphi^{(4)}$ als Endresultat genügen dürfte. Es wird so

$$\underline{E_\varphi^{(4)} = (1,50 \pm 0,07) \cdot 10^{-5}.}$$

d) Die Bestimmung der Phasenempfindlichkeit bei $C \approx 250$ pF erfolgte auf die in den Abschnitten 8 und 9 eingehend beschriebene Art und ergab den Wert $E_\varphi = (1,62 \pm 0,04) \cdot 10^{-5}$, was mit dem oben genannten Wert bei kleinen Messkapazitäten übereinstimmt, wenn man beachtet, dass die verhältnismässig grosse Abweichung der Schwierigkeit entspricht, die Apparatur bei den grossen Kapazitätsunterschieden unter den gleichen Bedingungen arbeiten zu lassen.

Es ist noch die Frage, welche Grösse die systematischen Fehler erreichen könnten. Zum Vergleich seien die erhaltenen Werte in der vierten Näherung für \bar{C} angegeben:

$x = 1,2$	$\bar{C} = 1,84$
1,6	1,36
2,0	1,49

Diese Abweichungen dürfen angesichts der Bestimmung dieser Werte aus der Differenz $C - C_p$ nicht als zu gross betrachtet werden. Es ist sogar fraglich, ob der Gang dieser Werte mit x reell ist, da die zufälligen Fehler grösser sind als die Abweichung vom Mittelwert. Immerhin wäre ein solcher Gang zu erwarten, da ja die Behandlung der Korrektur C als additive Konstante auch nur eine Näherungsdarstellung sein kann, indem die Zusammensetzung dieser Konstanten aus verteilten Kapazitäten und Selbstinduktionen ganz unbekannt ist und deren Einfluss auf die Phase mit der Grösse der totalen Kapazität C nicht absolut konstant bleiben muss. — Man darf deshalb annehmen, dass die systematischen Fehler die angegebenen Fehlergrenzen nicht übersteigen.

Es darf nach diesen Betrachtungen geschlossen werden, dass die optimale Kapazitätsempfindlichkeit von $E_c = 3,5 \cdot 10^{-7} \frac{\Delta C}{C} / \text{Skt.}$ auch bei Kapazitäten bis zur Grösse von wenigen Zentimetern erreicht werden kann, dass also die Empfindlichkeit in Richtung kleinerer Kapazitätswerte nicht abnimmt. Dies ist ein grosser Vorzug dieser Methode gegenüber der Brückenmethode.

12. Zusammenfassung.

Die beschriebene Methode zur Messung von sehr kleinen Kapazitäts- oder Phasenwinkeländerungen mit Hilfe einer Koinzidenzschaltung erlaubt die Ausführung solcher Messungen bei Tonfrequenz mit einer Empfindlichkeit von

$$E_c = 3,5 \cdot 10^{-7} \frac{\Delta C}{C} / \text{Skt.}$$

oder

$$E_\varphi = 1,8 \cdot 10^{-7} \Delta \varphi / \text{Skt.}$$

Die Methode bedeutet also in der vorliegenden Ausführung gegenüber der Brückenmethode keine wesentliche Verbesserung, solange die Messkapazitäten in der Grössenordnung 100 pF und darüber liegen. Dagegen bleibt die oben angegebene Empfindlichkeit auch für Kapazitäten von wenigen pF erhalten, was gegenüber der Brückenmethode einen wesentlichen Fortschritt bedeutet. Der Nachteil dieser Methode liegt darin, dass ein und dieselbe Schaltung nur Messungen in einem kleinen Frequenzbereich zulässt; dies vor allem der Eigenfrequenz der Multivibratoren wegen. Immerhin bedeutet es keine Schwierigkeit, durch geeignete Änderung der Schaltelemente die Schaltung zur Aufnahme beliebiger Frequenzen zwischen 50 und 50000 Hertz zu modifizieren.

Meinem verehrten Lehrer, Herrn Prof. Dr. EDGAR MEYER, möchte ich meinen Dank aussprechen für die Unterstützung dieser Arbeit durch seine wertvollen Anregungen.

Zürich, Physikalisches Institut der Universität.

Zur Kristallitgrösse dünner Antimonschichten

von W. Lotmar.

(3. VII. 1947.)

Vor einiger Zeit wurde hier über polarisationsoptische Befunde an im Vakuum aufgedampften Antimonschichten von einigen hundert Å Dicke berichtet¹⁾. Ausser einer makroskopischen Sphäritstruktur der Kristallite war noch eine „Körnung“ von der Grössenordnung $10\ \mu$ gefunden worden. Diese Körner wurden als mehr oder weniger einheitliche Kristallite angesprochen, was durch die Rauhigkeit der Interferenzbögen von Elektronenbeugungsaufnahmen gestützt erschien.

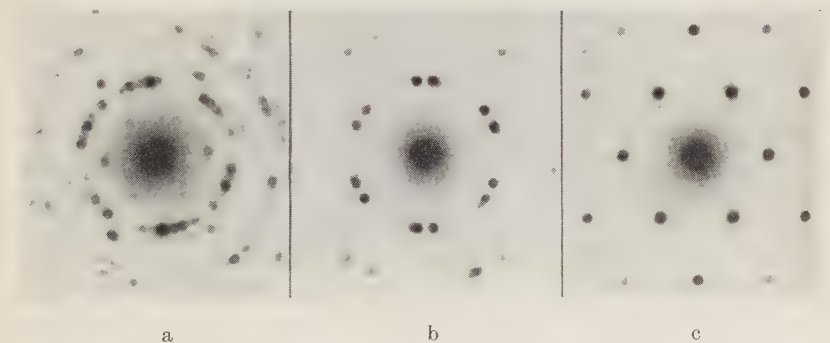


Fig. 1.

Diese Vermutung konnte nun durch neue Beugungsaufnahmen mit wesentlich kleinerem Strahldurchmesser, welche durch Umbau der verwendeten Apparatur möglich wurden, noch besser gesichert werden. Während nämlich der Strahldurchmesser am Ort des Präparates bei den früheren Aufnahmen etwa $300\ \mu$ betrug, war er bei den neuen nur etwa $30\ \mu$. Die Anordnung war dabei derart, dass durch eine Elektronenlinse die Kathode verkleinert auf das Präparat und gleichzeitig eine Blende vergrössert auf den Leuchtschirm abgebildet wurde²⁾. Die Beugungsflecke sind dann ebenfalls Bilder dieser Blende.

Die Erwartung, dass durch einen Strahldurchmesser von $30\ \mu$ nur noch wenige Kristallite erfasst würden, bestätigte sich nun vollkommen, wie aus den Abbildungen 1a—c hervorgeht. Diese

zeigen Beugungsbilder von verschiedenen Stellen eines Präparates, das durch Aufdampfen auf Kollodiumfolie im Vakuum erhalten wurde und dessen Dicke nicht weit über der kritischen Kristallisationsdicke von 180 Å lag (siehe I). Die Diagramme sind im wesentlichen sechszählig (Antimon kristallisiert trigonal) und zeigen fünf, drei und einen Kristalliten.

Bei vier Kristalliten der Fig. 1a liegt die c -Achse nahezu parallel zum Strahl, während der fünfte eine deutliche Neigung der c -Achse erkennen lässt, was ganz dem polarisationsoptischen Befund in (I) entspricht.

Durch die Feststellung eines Kristallitdurchmessers von der Größenordnung $10\ \mu$ erhält der Befund besonderes Interesse, dass im elektronenmikroskopischen Bild solcher Schichten noch ca. 300mal kleinere Strukturelemente erkennbar sind, wie bereits von verschiedenen Autoren beobachtet wurde³⁾⁴⁾⁵⁾⁶⁾.

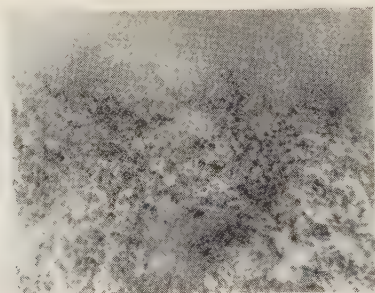


Fig. 2. 1 μ

Fig. 2 zeigt diese Struktur, und zwar an der Grenzzone des kristallisierten und amorphen Bereichs.

WILLIAMS und WYCKOFF⁶⁾ haben nun sehr wahrscheinlich gemacht, dass derartige Kontraste nicht durch Dickendifferenzen in der Schicht erzeugt werden, sondern durch Orientierungsunterschiede der Kristallachsen in den betreffenden Bereichen. Sie fanden nämlich bei Antimon wie auch andern Metallen in stereoskopischen Bildpaaren derselben Präparatstelle ganz verschiedene Details. Die Unähnlichkeit solcher Paare nahm dabei mit wachsender Schichtdicke zu.

Da andererseits ein Bezirk von Zehntausenden der elektronenmikroskopisch sichtbaren Strukturelemente ein einkristallartiges Beugungsdiagramm liefert, so muss geschlossen werden, dass die Orientierungsunterschiede der Elementarbereiche nur gering sein

können. Aus den Aufnahmen kann weiterhin geschlossen werden, dass solche Orientierungsunterschiede auch nur für die c -Achse in Betracht kommen, dagegen nicht für die a -Achsen, da die Interferenzen keinerlei Verlängerung in Richtung der DEBYE-SCHERRER-Kreise aufweisen.

Statistische Schwankungen der c -Achse um kleine Beträge dürften sich nun in der Tat im Beugungsdiagramm kaum bemerkbar machen. Die stärksten Interferenzen sind von der Form $(hk0)$ und würden maximale Intensität bei $1-2^\circ$ Neigung der betreffenden Ebenen gegen den Strahl ergeben. Dagegen würden von den niedrig indizierten (hkl) -Ebenen auch diejenigen mit den kleinsten Winkeln zur c -Achse, z. B. (201) und (322) , Winkel zwischen c -Achse und Strahl von $8-9^\circ$ für maximale Reflexion erfordern.

Andererseits dürften Orientierungsunterschiede von $1-2^\circ$ bei solchen Schichten schon genügen, um im Elektronenbild Kontraste zu erzeugen, da die Interferenzintensität in der Nähe des Maximums bei den vorliegenden Schichtdicken von rund 100 Netzebenen schon sehr richtungsempfindlich ist. Damit in Einklang wäre die erwähnte Beobachtung über die zunehmende Unähnlichkeit stereoskopischer Bildpaare mit der Schichtdicke. Die Apertur der Objektivlinse im Elektronenmikroskop ist ja normalerweise etwa 10^{-3} , sodass die kohärent gestreuten Bündel abgeblendet werden. Intensitätsunterschiede im Bild entstehen daher nur durch mehr oder weniger starke Schwächung des Primärstrahls infolge kohärenter oder inkohärenter Streuung.

Es mag noch bemerkt werden, dass jedenfalls beim Antimon das Vorhandensein von Dickendifferenzen in der Schicht schwer verständlich wäre. Aufgedampfte Antimonschichten sind nämlich im amorphen Zustand, welcher für Dicken unterhalb 180 \AA bei Zimmertemperatur beständig ist, vollkommen strukturlos, wie von WILLIAMS und WYCKOFF und auch hier festgestellt wurde (im Gegensatz zu einer Angabe von RUEDY⁴). Sie besitzen also keine merklichen Dickenschwankungen. Da nun bei dickeren Schichten die Kristallisation nur von relativ wenigen Zentren ausgeht und von diesen über Bereiche von Millimetergrösse in der Schicht fortschreitet, so ist nicht einzusehen, wieso sich dabei Dickenunterschiede ausbilden sollten. Dagegen sind kleinere Orientierungsunterschiede der Kristallachsen bei der „überstürzten“ Kristallisation von rund 10^4 Netzebenen pro Sekunde wohl denkbar. (Bestimmung der Kristallisationsgeschwindigkeit siehe I.)

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass die Kristallite von ca. 10μ Durchmesser, die durch Beugungsaufnahmen festgestellt

werden, vermutlich mosaikartig aufgebaut sind, wobei sich die einzelnen Mosaikblöckchen von ca. $30\text{ m}\mu$ Durchmesser durch Richtungsschwankungen der c -Achse um $1\text{--}2^\circ$ unterscheiden, während die Regelung der a -Achsen in der Schichtebene vollkommen ist.

Die Aufnahmen wurden von Herrn G. INDUNI mit dem Elektronenmikroskop der Firma TRÜB, TÄUBER & Co. hergestellt. Ich möchte ihm hierfür sowie für verschiedene Diskussionen bestens danken.

Laboratorium der Kern- & Co. AG., Aarau.

Literatur.

- ¹⁾ W. LOTMAR, H.P.A. **18**, 369 (1945). Als I. zitiert.
 - ²⁾ G. INDUNI, H.P.A. **19**, 231 (1946).
Siehe auch: W. KOSSEL und G. MÖLLENSTEDT, Ann. d. Ph. **36**, 113 (1939).
H. BOERSCH, Z. f. Phys. **116**, 469 (1940).
M. v. ARDENNE, Z. f. Phys. **117**, 515 (1941); **119**, 352 (1942).
 - ³⁾ E. RUSKA, Wiss. Veröff. Siemenswerke, Werkstoffsonderheft 1940, S. 372.
 - ⁴⁾ J. E. RUEDY, Phys. Rev. **59**, 926 (1941).
 - ⁵⁾ G. HASS, Koll. Z. **100**, 230 (1942).
 - ⁶⁾ R. C. WILLIAMS und R. W. G. WYCKOFF, J. appl. Phys. **15**, 712 (1944).
-

Etude de la réaction $F^{19}(n, \alpha) N^{16}$

par E. Bleuler et J. Rossel.

(11. VIII. 1947.)

Sommaire. La mesure de l'énergie Q_1 de la réaction $F^{19}(n, \alpha) N^{16}$ est effectuée par chambre d'ionisation et amplificateur proportionnel avec des neutrons mono-cinétiques de 3,68 MeV.

Les travaux d'ionisation effectifs des gaz utilisés, CF_4 et SiF_4 , dans les conditions expérimentales, sont déterminés au moyen des particules α d'énergie connue provenant de dépôts radioactifs (ThC' , ThC et Po). L'influence probable de l'énergie et de la recombinaison ionique inévitable est soigneusement prise en considération. Ces mesures effectuées en partie par comparaison avec le groupe α provoqué dans l'azote par la réaction $N^{14}(n, \alpha) B^{11}$ nous donne l'occasion de redéterminer l'énergie de cette réaction, la valeur trouvée étant $(-0,50 \pm 0,06)$ MeV.

Les courbes de distribution mesurées dans CF_4 et SiF_4 et interprétées au moyen des résultats obtenus précédemment, conduisent aux valeurs suivantes, caractéristiques de la réaction $F^{19}(n, \alpha) N^{16}$:

$Q_1 = (-0,73 \pm 0,25)$ MeV avec l'existence d'un niveau excité de N^{16} à 1,64 MeV au-dessus de l'état fondamental. De ce résultat on déduit:

$N^{16} = 16,0104.0 \pm 2,9$ et $E_\beta(N^{16}) = (9,68 \pm 0,28)$ MeV.

I. Introduction.

Dans un travail publié il y a quelques années par SCHERRER, HUBER et ROSSEL¹⁾ et étudiant les réactions déclenchées dans le fluor par les neutrons rapides (2,87 MeV), les deux possibilités suivantes étaient envisagées: $F^{19}(n, \alpha) N^{16}$ avec l'énergie de réaction Q_1 et $F^{19}(n, p) O^{19}$ avec l'énergie Q_2 . Les maxima de la distribution des chocs d'ionisation observés étaient interprétés comme groupes de protons et de particules α et conduisaient aux valeurs $Q_1 = 0,70$ et $Q_2 = 0,48$ MeV.

Ces résultats appellent certaines remarques.

Les limites supérieures des spectres β calculées à partir de Q_1 et Q_2 conduisent à $E_\beta(N^{16}) = 8,26$ MeV et $E_\beta(O^{19}) = 0,28$ MeV. Comme M. WÄFFLER de cet institut nous l'avait déjà fait remarquer, l'énergie de 0,28 MeV pour O^{19} dont la période est, d'après les mesures les plus récentes, de 27 sec., semble trop faible pour être compatible avec les courbes de SARGENT; par une mesure

approximative au moyen de la méthode d'absorption, il obtenait une valeur de $E_\beta(\text{O}^{19}) = 3,2 \text{ MeV}^2$.

Depuis lors l'énergie du spectre β a été déterminée avec une bonne précision par BLEULER et ZÜNTRI³⁾ avec le résultat suivant: $E_\beta(\text{O}^{19}) = (4,5 \pm 0,3) \text{ MeV}$, d'où pour Q_2 la valeur de $(-3,8 \pm 0,3) \text{ MeV}$.

Ce résultat élimine définitivement la possibilité de la réaction $\text{F}^{19}(n, p)\text{O}^{19}$ pour des neutrons d'énergie inférieure à env. 4 MeV.

L'erreur commise dans les mesures¹⁾ par chambre d'ionisation provient du fait que la méthode employée pour distinguer les groupes de particules α des groupes de protons est malheureusement très peu sûre dans le cas particulier du fluor. Cette méthode qui consistait à déceler les groupes de protons par la variation de forme et de hauteur des maxima correspondants, produite par l'effet de bord lorsqu'on varie la pression, a été faussée par le grand nombre de maxima et par une statistique un peu trop limitée (explicable par la très petite section efficace du processus étudié, de l'ordre de 10^{-27} cm^2 , et par la faiblesse relative de la source de neutrons utilisée).

BLEULER et coll.⁴⁾ ont également déterminé la limite du spectre β de N^{16} comme étant de $(10,3 \pm 0,7) \text{ MeV}$. On en déduit une valeur de Q_1 comprise entre les limites: $-0,65$ et $-2,05 \text{ MeV}$.

La discrépance vis-à-vis des résultats de¹⁾ n'étant pas explicable, nous avons dans le présent travail entrepris une nouvelle série de mesures de la réaction $\text{F}^{19}(n, \alpha)\text{N}^{16}$ pour trouver la raison de cette différence et afin de déterminer avec une plus grande précision l'énergie de réaction Q_1 .

II. Méthode et conditions expérimentales.

Nous avons utilisé les neutrons produits par le «tensator» de l'institut⁵⁾ à partir de la réaction $D+D$. De la valeur moyenne de la tension accélératrice des deutérons égale à 600 kV et contrôlée en permanence, on déduit une énergie des neutrons $E_n = (3,68 \pm 0,06) \text{ MeV}$ pour la direction d'incidence des deutérons ($\theta = 0$). L'erreur indiquée de 0,06 MeV donne la largeur du spectre de neutrons déterminée par la perte d'énergie des deutérons dans la glace lourde, correspondant à 80 keV, et par la fluctuation d'énergie provenant de la décharge dans le gaz D_2 .

La chambre d'ionisation employée est du type ordinaire à électrodes planes et anneau de garde. Sa capacité effective, de l'ordre

de 1 pF, peut se calculer pour les besoins de l'étalonnage avec une erreur de 1 à 2%.

Le gaz de remplissage purifié par solidification et distillation consistait pour une première série de mesures en tétrafluorure de carbone CF_4 sous 4,2 atm. et pour une seconde série en tétrafluorure de silicium SiF_4 sous 4,0 atm. Ces pressions relativement élevées entraînent une recombinaison non négligeable mais sont nécessaires si l'on veut travailler dans des conditions de rendement normales. La valeur du champ collecteur était fixée à 8100 V/cm.

Les chocs d'ionisation sont amplifiés par un étage préliminaire à lampe électromètre suivi d'un amplificateur du type décrit par BALDINGER⁶⁾ et dont les constantes de temps sont choisies de façon à éviter toute perte de charge. Les impulsions sont conduites à la sortie sur un oscillographe à boucle et enregistrées sur film photographique.

Un anneau d'influence est prévu sur la grille de la première lampe et permet en induisant des chocs de tension de valeur connue de contrôler en cours de mesure la constance de l'amplification. L'étalonnage proprement dit se fait en appliquant entre électrode *HT* de la chambre et masse des impulsions de tensions ajustables et de forme voisine de celles produites par ionisation.

III. Mesure des travaux d'ionisation de CF_4 et SiF_4 .

La détermination de l'énergie de réaction exige la connaissance du travail d'ionisation J et des conditions de saturation pour le gaz utilisé à la pression et pour le champ choisis.

a) Pour CF_4 cette détermination a déjà été faite parallèlement avec un certain nombre d'autres gaz par DICK, FALK et ROSSEL⁷⁾. Cependant la valeur mesurée $J_{CF_4} = 31,1$ eV et les courbes de saturation tracées se rapportent aux particules α de Th C' de 8,77 MeV. Pour les énergies que nous attendons, de l'ordre de 3 MeV, il est possible que le travail d'ionisation, qui semble avoir tendance à augmenter quand l'énergie diminue, soit quelque peu différent; de même la recombinaison est plus prononcée⁷⁾.

Une mesure que nous avons effectuée avec les particules α de Po (5,30) MeV, de la façon décrite dans le travail⁷⁾, donne $J_{CF_4} = (32,3 \pm 0,6)$ eV. Pour la pression et le champ utilisés (4,2 atm. et 8100 V/cm), la recombinaison n'est malheureusement pas négligeable (4,5% pour $E = 8,77$ MeV) et une correction est nécessaire:

En tenant compte de la densité ionique et de sa répartition le long de la trajectoire (courbe de BRAGG), nous avons calculé, à partir de la perte de charge $\Delta Q/Q_0 = -4,5\%$ pour 8,77 MeV, la valeur $\Delta Q/Q_0 = -7\%$ pour 3 MeV. (Cette méthode de calcul peut se contrôler par les courbes connues pour N_2 aux énergies de 8,77 et 6,05 MeV⁷⁾, et a été trouvée satisfaisante). La perte de charge de 7% conduit à un travail d'ionisation effectif pour CF_4 de 34,7 eV. Aux alentours de 1 MeV la perte est de 8%, d'où $J_{\text{eff}} = 35,1$ eV.

b) Pour SiF_4 nous avons fait une mesure avec les α de Th C', obtenant à la limite de recombinaison nulle: $J_{SiF_4} = (33,0 \pm 0,7)$ eV. Les mêmes raisons que celles invoquées pour CF_4 exigent une correction. Comme nous ne disposons pas dans ce cas-ci de courbes de saturation, il semble raisonnable d'opérer par analogie avec CF_4 tant pour la variation avec l'énergie que pour la recombinaison. On trouve ainsi un travail d'ionisation effectif pour 3 et 1 MeV de 36,5 et 37,0 eV respectivement.

c) Cas d'un mélange de CF_4 et de N_2 .

Le travail d'ionisation de l'azote mesuré pour les particules α de Th C' est d'après⁷⁾ de $(33,7 \pm 1,3)$ MeV. Comme cette valeur est plus faible que celle admise généralement de 35 eV et que d'autre part elle se rapporte à une énergie plus grande que celle qui nous intéresse, nous avons effectué une mesure dans N_2 simultanément avec les α de Po (5,30 MeV), de Th C (6,05 MeV) et de Th C' (8,77 MeV) dans des conditions de très faible recombinaison. Nous avons obtenu dans l'ordre: $J_{N_2} = 34,6; 34,3$ et 33,8 eV avec une erreur de 2% environ. Ces résultats semblent confirmer d'une part la valeur mesurée par⁷⁾ et d'autres part le fait déjà mentionné d'une diminution probable de J pour des énergies croissantes.

Dans l'article¹⁾ la détermination de J_{CF_4} avait été tentée en ajoutant à CF_4 une faible proportion de N_2 (8,4%) et en déterminant la position du groupe α provenant de $N^{14}(n, \alpha)B^{11}$ par rapport à la position des groupes du fluor. D'après les résultats obtenus, l'abscisse du maximum de l'azote permettait de calculer un travail d'ionisation du mélange de 43,7 MeV.

Ce résultat paraît étrange quand on connaît les travaux d'ionisation de CF_4 et de N_2 . La seule explication possible semble résider dans un accroissement de la recombinaison dû à l'addition de N_2 et se faisant fortement sentir dans les conditions de pression assez défavorables choisies alors pour la mesure (6,2 atm. et 8200 V/cm).

Pour tirer ce point au clair, nous avons effectué deux nouvelles mesures avec un mélange de même composition (8,4 % N_2), l'une avec 4,6 atm. et 8100 V/cm en déterminant le maximum de la réaction $N^{14}(n, \alpha)B^{11}$, l'autre au moyen des particules α de Po avec 1,7 atm. et 6100 V/cm donc, par suite de la faible pression, dans des conditions meilleures de saturation. Dans le premier cas et en prenant pour énergie de la réaction $N^{14}(n, \alpha)B^{11}$ la valeur $Q = -0,50$ MeV (voir ci-dessous), nous obtenons un travail d'ionisation effectif du mélange de 40,6 eV. Dans le second cas la mesure donne la valeur 32,5 eV, en accord avec la moyenne calculée à partir des travaux d'ionisation de CF_4 et de N_2 . Ces résultats donnent bien l'explication du phénomène dans le sens supposé d'un effet de recombinaison accru par le mélange. Nous nous proposons d'étudier ultérieurement en détail ce phénomène assez inattendu.

La valeur de 43,7 eV indiquée plus haut représente vis-à-vis de 32,5 une recombinaison de 34 %. Il est clair qu'il est illusoire de chercher à déterminer dans ces conditions la position d'un groupe particulier, normalement déjà à peine distinct des autres, comme c'est le cas pour le fluor. Ceci explique l'erreur d'interprétation commise dans le travail¹⁾ où le maximum identifié comme appartenant au fluor est très probablement dû à la réaction $N^{14}(n, p)C^{14}$. Il en résulte une valeur erronée de 44,6 eV pour le travail d'ionisation de CF_4 et un décalage de toutes les énergies mesurées.

IV. Remarque au sujet de l'énergie de réaction de $N^{14}(n, \alpha)B^{11}$.

Cette énergie Q que nous avons déjà mentionnée dans les considérations du § III peut s'obtenir à partir des masses des atomes participant à la réaction et données par ex. dans l'«Isotopenbericht 1942» par FLÜGGE et MATTAUCH⁸⁾. On trouve $Q = (-0,27 \pm 0,06)$ MeV.

Cependant en corrigeant les données de BALDINGER et HUBER⁹⁾ sur la réaction $N^{14}(n, \alpha)B^{11}$ pour tenir compte de la valeur 3,31 MeV donnée par BONNER¹⁰⁾ pour l'énergie de la réaction $D + D$, on trouve $Q = (-0,49 \pm 0,10)$ MeV, valeur incompatible avec celle déduite des masses.

Nous avons répété avec les neutrons de 3,68 MeV les mesures dans l'azote pour différentes valeurs de la pression et du champ assurant de bonnes conditions de saturation. Le résultat, calculé à partir d'un travail d'ionisation de l'azote de 34,5 eV est de

$Q = (-0,50 \pm 0,06)$ MeV. (Cette valeur a été utilisée au § III). BARSCHALL et BATTAT¹¹⁾ indiquent la valeur $Q = -0,26$ MeV, mais ce résultat est obtenu de façon trop indirecte pour être déterminant. Il semble par conséquent qu'une différence irréductible existe jusqu'à nouvel avis entre les résultats livrés par la méthode de la chambre d'ionisation et les masses admises à ce jour.

V. Résultats et discussion.

1. CF_4 .

La courbe de distribution obtenue dans les conditions indiquées au § III et résultant de plusieurs mesures est donnée fig. 1.

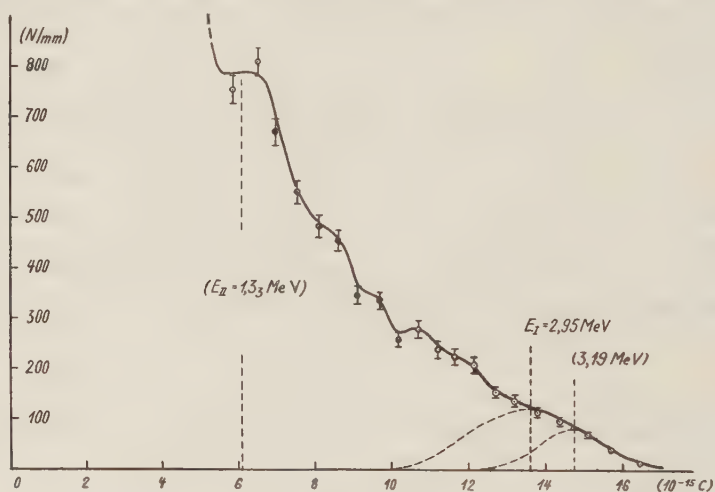


Fig. 1.

En ordonnées sont portés les nombres d'impulsions par mm. de déviation enregistrée et en abscisses les charges d'ionisation. La courbe présente un certain nombre de maxima peu distincts les uns des autres et a le même caractère que celle publiée dans l'article¹⁾; une comparaison n'est cependant pas possible à cause de la différence d'énergie (1 MeV env.) entre les neutrons employés.

Nous ne retiendrons que les groupes extrêmes indiqués sur la figure par I et II.

Pour déterminer la position du maximum I, nous avons tracé deux contours différents du groupe dont les largeurs de 1,0 et $1,8 \cdot 10^{-15} C$ correspondent la première à un cas idéal (très faible

intensité de neutrons c'est-à-dire peu de noyaux de recul) et la seconde à un cas normal. Ces largeurs ont été estimées de la façon suivante:

a) A partir de la largeur que nous avons observée pour le groupe α de $N^{14}(n, \alpha)B^{11}$ on obtient resp. les largeurs 0,8 et $1,4 \cdot 10^{-15}$ C.

b) Ces valeurs sont à multiplier par un facteur tenant compte de l'influence de la recombinaison et de celle des noyaux de recul (C^{12}) toutes deux plus marquées dans CF_4 que dans N_2 . Ce facteur peut être estimé égal à 1,2 par comparaison avec la forme du groupe observée pour le mélange $CF_4 + N_2$.

L'abscisse du maximum I est fixée ainsi à $(13,6 \pm 0,5) \cdot 10^{-15}$ C, ce qui donne avec $(J_{CF_4})_{\text{eff}} = 34,7$ eV, pour énergie probable du groupe: $E_I = (2,95 \pm 0,25)$ MeV. (La valeur 3,19 MeV représente une limite supérieure). Ce résultat conduit pour l'énergie de la réaction $F^{19}(n, \alpha)N^{16}$ à la valeur:

$$Q = (-0,73 \pm 0,25) \text{ MeV.}$$

Le maximum II correspondant probablement à un état excité de N^{16} est peu certain et très fortement déformé par les noyaux de recul C^{12} dont le spectre s'étend jusqu'à 1,05 MeV. Son énergie serait de l'ordre de 1,3 MeV.

Pour assurer l'existence de ce niveau et le mettre mieux en évidence, nous avons répété la mesure en remplaçant CF_4 par SiF_4 . Les noyaux Si^{28} de recul n'atteignent en effet que 0,5 et ceux de F^{19} 0,7 MeV.

2. SiF_4 .

Les neutrons rapides peuvent donner lieu avec le silicium à des réactions susceptibles éventuellement de fausser nos mesures. Les réactions qui entrent en ligne de compte sont les suivantes: (n, p) avec Si^{28} (92,2%, $Q = -3,8$ MeV), Si^{29} (4,67%, $Q = -1,8$), Si^{30} (3,05%, $Q = ?$); (n, α) avec Si^{28} ($Q = -3,9$ MeV), Si^{29} ($Q = -0,77$), Si^{30} ($Q = -4,05$). Les abondances relatives et les énergies de réactions indiquées en parenthèses correspondent aux données de l'«Isotopenbericht 1942». On voit que trois réactions en tout sont à craindre; (énergies $|Q| < 3,68$ MeV).

Les deux premières conduisent à des isotopes instables de l'aluminium. L'irradiation d'un échantillon de Si métallique par les neutrons $D+D$ pendant 10 min. n'ayant donné aucune activité détectable, nous pouvons laisser ces deux réactions hors de considération.

Ce test par contre ne s'applique pas à la troisième réaction dont le noyau résultant Mg^{26} est stable. L'éventualité d'un groupe aux environs de 2,9 MeV dû à Si subsiste par conséquent. Cependant aux alentours de 1 MeV soit dans la région qui nous intéresse particulièrement, la probabilité d'un groupe α de Si est très réduite par suite du facteur de GAMOW et il semble permis d'exclure une influence perturbatrice de Si dans ce domaine

La courbe de répartition obtenue est indiquée dans la figure 2.

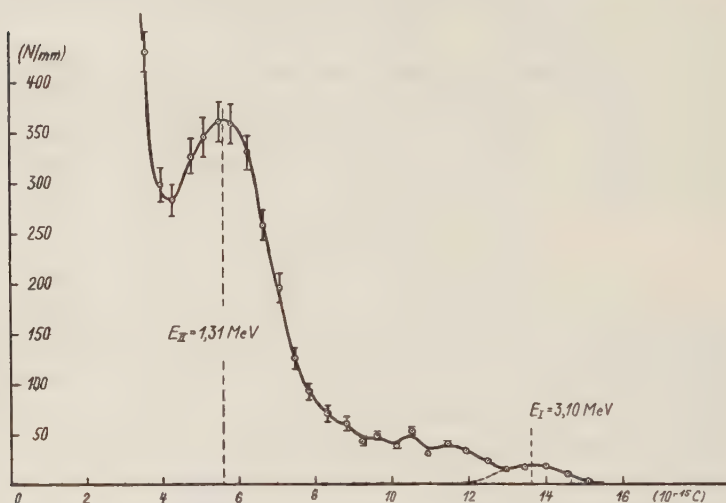


Fig. 2.

La courbe a pour les grandes énergies la même allure que pour CF_4 . Par contre le maximum II est maintenant très distinct. Son abscisse définit une énergie de $(1,31 \pm 0,15) \text{ MeV}$; c'est-à-dire une valeur correspondante de $Q = -2,27 \text{ MeV}$.

Pour assurer définitivement ces résultats, il est nécessaire d'éliminer la possibilité d'une résonance du noyau « compound » F^{20} excitée par des neutrons d'énergie proche de $1,31 + 0,73 = 2,04 \text{ MeV}$ et présents, bien qu'en très faible proportion, à l'extrémité inférieure du spectre $D+D$. Dans ce cas, le maximum devrait croître très fortement lorsqu'on déplace le spectre de neutrons vers les énergies voisines de celle de résonance, par exemple en irradiant SiF_4 sous des angles θ croissant de 0° à 180° . Nous avons fait deux mesures avec $\theta = 60^\circ$ correspondant à $E_n = 3,12 \text{ MeV}$ et avec $\theta = 112^\circ$ soit $E_n = 2,34 \text{ MeV}$ sans observer d'accroissement du maximum. Au contraire le groupe se déplace vers les faibles énergies pour

disparaître dans la zone des noyaux de recul, ce qui confirme l'existence d'un niveau excité de N^{16} .

Aucune réaction marquée due à Si n'est visible sur la courbe de la figure II. Le maximum indiqué à 3,10 MeV semble appartenir au fluor et correspond de façon satisfaisante avec la valeur trouvée pour CF_4 .

VI. Conclusions.

La réaction $F^{19}(n, \alpha)N^{16}$ conduit à plusieurs groupes de particules α . La position des deux groupes extrêmes observés a été déterminée. L'un (2,95 MeV) correspond à l'état fondamental de N^{16} , l'autre (1,31 MeV) à un niveau excité d'énergie égale à la différence, soit 1,64 MeV.

L'énergie $Q = -0,73$ MeV de la réaction permet au moyen des masses de F^{19} , He^4 et n de calculer celle de N^{16} . On trouve:

$$\underline{N^{16} = 16,0104 \cdot 0 \pm 2,9 .}$$

De la relation $N^{16} = 0^{16} + \beta + E_{\beta}$, on déduit pour énergie du spectre β de N^{16} :

$$\underline{E_{\beta} = (9,68 \pm 0,28) \text{ MeV.}}$$

Cette dernière valeur est à comparer aux résultats de BLEULER et coll.⁴⁾ qui proposent deux possibilités suivant le degré de complexité du spectre: 10,1 MeV dans le cas où l'on admet l'existence d'une radiation γ de 5,1 MeV ou 10,5 MeV au cas où cette radiation n'existerait pas. Notre résultat confirme la première hypothèse.

Nous adressons nos vifs remerciements à M. le prof. P. SCHERRER pour son intérêt et la possibilité qu'il nous a donnée d'exécuter ce travail.

Zurich, Institut de Physique de l'E. P. F.

Bibliographie.

- 1) SCHERRER, HUBER et ROSSEL, H.P.A. **14**, 618 (1941).
- 2) HUBER, LIENHARD, SCHERRER et WÄFFLER, H.P.A. **18**, 221 (1945).
- 3) BLEULER et ZÜNTI, H.P.A. **20**, 195 (1947).
- 4) BLEULER, SCHERRER, WALTER et ZÜNTI, H.P.A. **20**, 96 (1947).

- ⁵⁾ BLEULER et ZÜNTI, H.P.A. **19**, 139 (1943).
- ⁶⁾ BALDINGER, H.P.A. **19**, 423 (1946).
- ⁷⁾ DICK, FALK-VAIRANT et ROSSEL, H.P.A. **20**, 357 (1947).
- ⁸⁾ FLÜGGE et MATTAUCH, Phys. Z. **44**, 181 (1943).
- ⁹⁾ BALDINGER et HUBER, H.P.A. **12**, 330 (1939).
- ¹⁰⁾ BONNER, Phys. Rev. **59**, 239 (1941).
- ¹¹⁾ BARSCHALL et BATTAT, Phys. Rev. **70**, 245 (1946).

Bericht über die Tagung der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft

in Genf, am 31. August 1947.

(anlässlich der 127. Jahresversammlung der Schweizerischen Naturforschenden Gesellschaft.)

Präsident: Prof. Dr. E. MIESCHER (Basel)

Vizepräsident: Prof. Dr. H. MÜGELI (Neuchâtel)

Sekretär: Priv.-Doz. Dr. G. BUSCH (Zürich).

Geschäftlicher Teil.

Als ordentliche Mitglieder der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft wurden aufgenommen:

HH. B. GLOOR (Oberwinterthur); A. REMUND (Solothurn),
Dr. R. STADLIN (Dürrenast); P. SULZER (Winterthur).

Die S. P. G. zählt zur Zeit 319 Mitglieder.

Der Ort der Frühjahrstagung ist noch unbestimmt.

Wissenschaftlicher Teil.

Sur l'impédance de radiation d'un dipole électromagnétique

par J. PATRY, Albiswerk Zürich A.G.

Dans diverses publications, nous avons étudié, avec MÜLLER-STROBEL, l'impédance de radiation et la force électromotrice à vide du dipole électromagnétique. Une comparaison avec l'expérience a paru récemment sans forme résumée. Un exposé détaillé paraîtra prochainement.

Dans tous ces travaux, nous avons négligé un effet qui peut avoir une grande importance, surtout sur les dipôles pour ondes décimétriques. La méthode de HALLÉN que nous avons utilisée, conduit assez rapidement au résultat. Dans certains cas, une appro-

ximation très simple est possible, qui est particulièrement intéressante dans la pratique.

L'antenne (voir fig. 1) est formée de deux cylindres métalliques de diamètre 2ϱ et de longueur $(l - x_0)$ dans le prolongement l'un de l'autre et espacé de $2 x_0$. L'alimentation se fait par les extrémités rapprochées des cylindres.

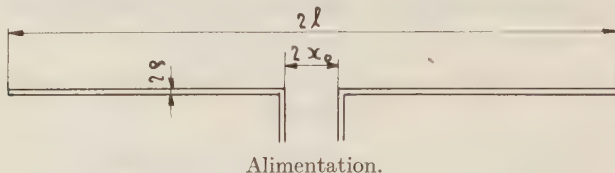


Fig. 1. — Le dipôle et ses dimensions.

A partir de la relation entre le vecteur de Hertz Φ et le courant dans l'antenne:

$$\Phi = \frac{1}{c} \int_A \frac{J(\xi) e^{-j \frac{2\pi r}{\lambda}}}{r} d\xi$$

et de l'équation d'onde de ce vecteur:

$$E(x) = -\frac{j\lambda}{2\pi} \left[\frac{\partial^2 \Phi}{\partial x^2} + \frac{4\pi^2}{\lambda^2} \Phi \right] = 0.$$

On obtient une équation intégrale définissant le courant $J(X)$:

$$a' \sin |X| = b' \cos X = \frac{J(X)}{c} \int_A \frac{d\xi}{R} + \frac{1}{c} \int_A \frac{J(\xi) e^{-jR'} - J(X)}{R'} d\xi$$

avec

$$X = \frac{2\pi x}{\lambda}; \quad R = \frac{2\pi r}{\lambda}; \quad R' = \frac{2\pi r'}{\lambda}.$$

r représente la distance d'un point de l'axe du cylindre à un point sur la surface du cylindre. r' par contre est la projection de r sur l'axe du cylindre.

La première intégrale est facile à évaluer:

$$\int_A \frac{d\xi}{R} = \ln \left[\frac{(X - X_0 + \sqrt{(X - X_0)^2 + 4\pi^2 \varrho^2 / \lambda^2}) (L - X + \sqrt{(L - X)^2 + 4\pi^2 \varrho^2 / \lambda^2}) (L + X)}{4\pi^2 \varrho^2 / \lambda^2 (X_0 + X)} \right]$$

avec les abréviations suivantes:

$$X = \frac{2\pi x}{\lambda}; \quad X_0 = \frac{2\pi x_0}{\lambda}; \quad L = \frac{2\pi l}{\lambda}.$$

En négligeant ϱ^2/x^2 par rapport à l'unité, nous pouvons simplifier cette expression:

$$\begin{aligned} \int_1^X \frac{d\xi}{R} &= \Omega + h(X) = 2 \ln \left(\frac{2l}{\varrho} \right) + \ln \frac{(X - X_0)(L^2 - X^2)}{L^2(X + X_0)} : X_0 < X < L \\ &= \Omega' = \ln \left(\frac{l(l + x_0)}{\varrho x_0} \right) : X = X_0 \\ &= \frac{\Omega}{2} + \ln 2 = \ln \left(\frac{4l}{\varrho} \right) : X = L. \end{aligned}$$

En première approximation, l'équation intégrale s'écrit sous la forme:

$$\begin{aligned} J(X) &= a \sin |X| + b \cos X - \frac{J(X) \cdot h(X)}{\Omega} \\ &- \frac{1}{\Omega} \int_1^X \frac{(a \sin |\xi| + b \cos \xi) e^{-j|X-\xi|} - (a \sin |X| + b \cos X)}{|X-\xi|} d\xi. \end{aligned}$$

A l'aide de la fonction transcendante

$$M(X) = -\frac{1}{2} [\ln(2\gamma X) - C_i(2X) + jS_i(2X)]$$

les intégrales peuvent être évaluées facilement. L'équation intégrale peut s'écrire:

$$J(X) = a \alpha(X) + b \beta(X) - \frac{J(X) h(X)}{\Omega}.$$

A partir des conditions aux limites

$$J(L) = 0 \quad \text{et} \quad J(X_0) = \frac{60 j \Omega a}{R_s} \quad R_s \text{ [ohms]}$$

il est facile d'en déduire l'impédance de radiation

$$R_s = \frac{60 j \Omega' \beta(L)}{\alpha(X_0) \beta(L) - \alpha(L) \beta(X_0)}.$$

En négligeant les pertes (comme nous l'avons fait jusqu'à présent) et (X_0^2/L^2) devant l'unité, on obtient la formule générale:

$$R_s = -60 j \Omega' \frac{\Omega + F_1(L) - 2 j (X_0/L) \operatorname{tg} L}{\Omega \operatorname{tg} L + F_2(L) - 2 X_0 [\Omega' - F_3(L)]}$$

avec les fonctions

$$F_1(L) = -(1 + j \operatorname{tg} L) \cdot M(2L)$$

$$F_2(L) = j(1 + j \operatorname{tg} L) \cdot [4M(L) - M(2L)] + \ln 4 \cdot \operatorname{tg} L$$

$$F_3(L) = -(1 + j \operatorname{tg} L) \cdot [1 - \frac{1}{2} M(2L)] - \frac{\operatorname{tg} L}{L}.$$

Pour les domaines de résonance où $\operatorname{tg} L$ est soit très petit, soit très grand, les équations peuvent se simplifier:

$$R_s = \frac{60 \Omega'}{\Omega} [-M(2L) - 2X_0/L - j\Omega \cotg L] [\text{Ohms}]; L \cong n\pi + \pi/2;$$

$$\frac{60 \Omega \Omega'}{R_s [\text{Ohms}]} = [4M(L) - M(2L)] - 2jX_0 \left[\Omega' + 1 - \frac{M(2L)}{2} \right] + j\Omega \operatorname{tg} L$$

pour $L \cong n\pi$.

Un exposé détaillé de cette théorie comprenant l'étude des pertes sera publié ultérieurement.

BIBLIOGRAPHIE.

MÜLLER-STROBEL und PATRY, HPA 17; 127, 159 und 454; 1944; Schweizer Archiv 12, 201, 1946.

MÜLLER-STROBEL, Bull. SEV. 37, 710 (1946).

Nouveaux matériaux pour la technique des courants faibles

par R. GOLDSCHMIDT, Lausanne.

Pendant les années de guerre, les qualités des matières magnétiques ont été considérablement améliorées par les travaux des grands laboratoires industriels.

Ces matières peuvent être classées dans 3 groupes soit les matières pour aimants permanents, les matières pour la technique des courants forts et les matières pour la technique des courants faibles.

Pour les aimants permanents les alliages Alnico ont permis d'obtenir une énergie remanente max. $[(B \cdot H)_{\max}]$ d'env. $5 \cdot 10^6$.

La technique des courants forts utilise la tôle siliciée en très grandes quantités (p. e. un grand transformateur de puissance exige à lui seul plus de 10 tonnes de tôles). Une forme spéciale de la tôle siliciée est l'hypersil (Westinghouse) qui possède une direction préférée de l'aimantation.

Pour obtenir des matériaux magnétiques qualifiés pour la technique des courants faibles les laboratoires de Philips ont choisi un chemin tout neuf, en développant les matières dites Ferroxcubes. Il s'agit des corps non métalliques de la forme $M\text{Fe}_2\text{O}_4$ ou M représente un métal bivalent. Les ferroxcubes ont des perméabilités initiales pouvant surpasser 1000 et une résistivité qui peut atteindre 10^5 ohms·cm. (pour le fer on a 10^{-5} ohms·cm.).

D'autres progrès ont été faits dans le domaine des alliages à base de fer et de nickel. Des permalloys (matières de haute perméabilité initiale) et des isoperms (matières de grande stabilité) on est arrivé

aux supermalloys (développés aux laboratoires de la Bell) et aux superisoperms (développés aux Câbleries de Cossonay). Pour les supermalloys on obtient des perméabilités initiales au-dessus de 100 000 et des perméabilités maxima jusqu'à 1 000 000 environ. Les superisoperms (brevet demandé) possèdent une perméabilité initiale au-dessus de 1000 et une instabilité magnétique plus petite que 2 même 1%.

Die Dipolmomente der Dinitrotoluole und die quantenmechanische Erklärung der Reaktionsfähigkeit ihrer Methylgruppen

von V. HARDUNG, Fribourg.

Führt man mit Dinitrotoluol gewisse chemische Reaktionen aus, so ergibt sich, dass die Ausbeute dieser Reaktionen, die an der Methylgruppe angreifen, von der Stellung der beiden Nitrogruppen am Benzolkern des Dinitrotoluols abhängt¹⁾²⁾. Dieses eigentümliche Verhalten wird durch die Ladungsverteilung im Molekül bedingt. Quantenmechanische Berechnungen haben erwiesen, dass der Einfluss eines Substituenten auf die Ladungsverteilung eines Benzolkerns in einer Veränderung der Ladung bei den Para- und Orthoecken besteht³⁾⁴⁾. Im Falle einer NO₂-Gruppe wird in den Para- und Orthostellungen relativ zu dieser Gruppe die Ladung im positiven Sinne vergrößert, wodurch die Möglichkeit einer Substitutionsreaktion an dieser Stelle i. A. verringert wird oder, wenn schon ein Substituent, beispielsweise eine Methylgruppe vorhanden ist, deren Bindung gelockert und ihre Reaktionsfähigkeit erhöht werden sollte. Wenn diese Hypothese richtig ist, sollte sich eine entsprechende Ladungsverteilung in den Dipolmomenten der sechs möglichen Dinitrotoluole bemerkbar machen. Dass eine deutliche Parallele zwischen der theoretischen Erwartung, dem gemessenen Dipolmoment und der beobachteten Reaktionsausbeute besteht, ist aus der mitgeteilten Tabelle ersichtlich.

¹⁾ LOUIS CHARDONNENS, sur l'aptitude réactionnelle du groupement méthylique chez certains composés aromatiques. Comptes rendus de la Société fribourgeoise des Sciences Naturelles. 1945/46.

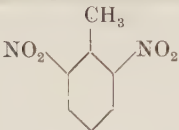
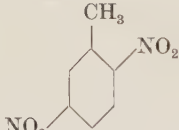
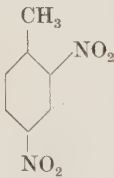
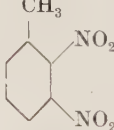
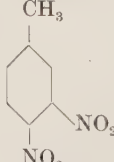
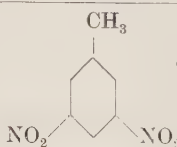
²⁾ P. HEINRICH, Sur l'aptitude réactionnelle du groupement méthylique. Dans quelques dérivés du toluène et de l'azobenzène. Thèse, Fribourg 1942.

³⁾ ALBERTE PULLMAN, Contribution à l'étude de la structure électronique des molécules organiques. Etude particulière des hydrocarbures cancérogènes. Thèse, Paris 1946, Masson & Cie, Paris 1946; RAYMOND DAUDEL et ALBERTE PULLMAN, L'étude des molécules par la méthode de la Mésomerie, Journal de Physique et le radium, t. 7, p. 59 (1946); t. 7, p. 74 (1946).

⁴⁾ LINUS PAULING, The Nature of the Chemical bond, Cornell University-Press, Ithaca N. Y. 1945, p. 148 ff.

Unter μ_{dnb} sind die Werte der entsprechenden Dinitrobenzole und unter μ_{theor} diejenigen Momente eingetragen, die man aus den ersteren durch vektorielle Addition des kleinen Momentes (0,35 Debyeinheiten) der Methylgruppe erhält. Diese theoretischen Werte der Dinitrotoluole weichen von den in der nächsten Spalte gegebenen experimentellen Werten etwas ab. In der folgenden Spalte sind nun diejenigen CH_3 -Momente eingetragen, die man zu μ_{dnb} vektoriell addieren müsste, um die experimentellen Werte zu

Tabelle.

Formel	μ_{dnb}	μ_{th}	μ_{exp}	μ_{CH_3}	Reaktions- Fähigkeit
	3,83	3,48	2,95 Benzol 2,74 CCl_4	+ 0,9 + 1,1	stark
	0	0,35	0,94 Benzol	+ 0,9	schwach
	3,83	4,01	3,75 Benzol 3,87 CCl_4	- 0,2 + 0,1	sehr stark
	5,84	5,84	5,77 Benzol	0	praktisch 0
	5,84	6,15	6,32 Benzol 6,21 CCl_4	+ 0,6 + 0,5	stark
	3,83	4,18	4,05 Benzol	+ 0,2	0

erhalten. Die letzte Spalte endlich gibt eine rohe Schätzung der Reaktionsfähigkeit der Methylgruppe wieder. Aus der Tabelle ersieht man, dass ausser beim 2,4 Dinitrotoluol die drei erwähnten Gesichtspunkte im wesentlichen im Einklang miteinander stehen.

Zum Schlusse sei noch bemerkt, dass eine strenge Berechnung der Ladungsverteilung des unsubstituierten Toluols nach der von DAUDEL und PULLMAN angegebenen Methode der Mesomerie qualitativ dieselbe, aber quantitativ noch ausgeprägtere Ladungsverteilung ergibt, als sie von den genannten Verfassern auf Grund einer Näherungsmethode erhalten wurde.

Eine ausführliche Arbeit darüber wird zu gegebener Zeit in den *Helvetica Physica Acta* erscheinen.

Thermospannungen des Siliciumcarbids gegen Kupfer und Platin

von G. BUSCH, P. SCHMID und R. SPÖNDLIN, ETH. Zürich.

Die bisherigen Untersuchungen am Siliciumcarbid haben gezeigt, dass diese Substanz für das Studium der Eigenschaften halbleitender Verbindungen sehr geeignet ist. Dank der strengen Reproduzierbarkeit der Messresultate an individuellen SiC-Kristallen ist eine weitgehende Prüfung der Elektronentheorie der Halbleiter möglich geworden. Die Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment ist, soweit sie die elektrische Leitfähigkeit und den Hall-Effekt betreffen, sehr gut.

Um weitere Daten zu gewinnen, wurden die *Thermospannungen* zahlreicher Siliciumcarbid-Einkristalle in einem grossen Temperaturbereich gegen *Kupfer* und *Platin* gemessen. Ein Vergleich mit der Theorie¹⁾ schien dabei zum vornherein von Interesse.

Untersucht wurden dieselben einkristallinen SiC-Proben, an welchen früher Leitfähigkeit und Hall-Effekt gemessen worden waren²⁾. Zwischen dem Siedepunkt des flüssigen Stickstoffs und Zimmertemperatur wurde die Thermospannung des SiC gegen *Kupfer* gemessen. Infolge des kleinen THOMSON-Koeffizienten des Kupfers ergibt sich praktisch direkt die *absolute* Thermospannung. Bei hohen Temperaturen, bis 1000° K erfolgten die Messungen gegen *Platin*.

Zur Temperatur-Messung wurden Kupfer-Konstanten bzw. Pt-Pt/Rh-Thermoelemente verwendet. Die Temperatur- und Temperatur-Differenz-Messungen erfolgten durch Kompensation. Die

¹⁾ Siehe H. FRÖHLICH, Elektronentheorie der Metalle. 1936.

²⁾ G. BUSCH, H.P.A. **19**, 167 (1946); G. BUSCH und H. LABHARDT, H.P.A. **19**, 463 (1946).

Thermospannungen SiC-Metall wurden wegen der hohen Kontaktwiderstände mit einem Röhrenvoltmeter gemessen. Für die Messungen bei tiefen Temperaturen wurden auf die beiden Enden der prismatischen SiC-Stäbchen kleine Kupferblöcke aufgeschoben, in welchen die Kristalle je auf einer Schneide aus Kupfer auflagen. Beide Kupferblöcke konnten geheizt und gegeneinander auf verschiedenen Temperaturen gehalten werden. Zur Messung der Temperatur und der Temperaturdifferenz wurde in beide Blöcke je ein Thermoelement eingeführt, wovon das eine mit dem ersten Block verlötet, das andere gegen den zweiten durch ein Quarzröhrchen von ca. 0,15 mm Wandstärke elektrisch isoliert war. Der mit dem Thermoelement verlötete Block wurde geerdet, der andere mit dem Gitter der Elektrometerröhre verbunden.

Es wurde eine Abhängigkeit der gemessenen Thermospannung vom Druck der Metallkontakte gegen den SiC-Kristall festgestellt. Je grösser der Druck, um so grösser waren die Thermospannungen; bei hohen Drucken strebten diese einem Sättigungswert zu. Diese Tatsache konnte auf die Druckabhängigkeit des Wärmewiderstandes der Kontaktstellen zurückgeführt werden.

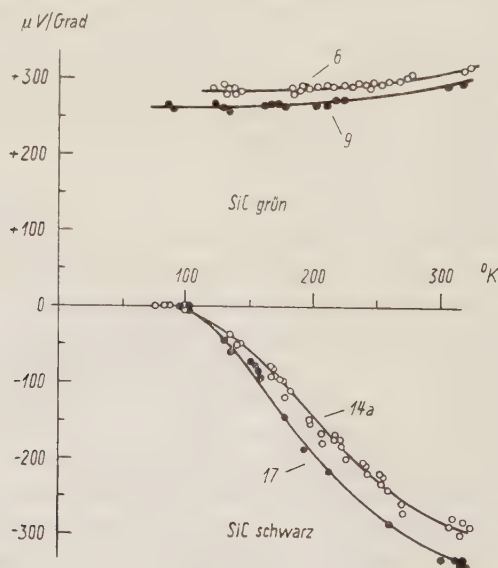


Fig. 1.

Thermospannung des Siliciumcarbids gegen Kupfer

Die Messergebnisse für tiefe Temperaturen sind durch je 2 typische Kurven in Fig. 1 dargestellt. Nach der Theorie wäre mit steigender Temperatur ein *Abfall* der Thermospannung umgekehrt

proportional zur absoluten Temperatur zu erwarten. Im Gegensatz dazu *steigt* beim schwarzen SiC der Absolutwert der Thermospannung zuerst stark und dann immer flacher an. Auch für grünes SiC steigt die Thermospannung monoton mit der Temperatur, jedoch viel weniger rasch; ein steiler Abfall wäre wahrscheinlich bei noch tieferen Temperaturen zu erwarten. Das Vorzeichen des Effektes stimmt dagegen mit der Theorie und dem Vorzeichen des HALL-Effektes überein. Grünes SiC als *n*-Typ-Halbleiter liefert *positives*, schwarzes SiC als *p*-Typ dagegen *negatives* Vorzeichen. Ebenso ergibt sich in qualitativer Übereinstimmung mit der Theorie, dass die Grösse der Thermospannung parallel mit der Grösse der Aktivierungsenergie ϵ läuft.

Qualitativ scheint sich auch bei hohen Temperaturen ein Anwachsen der Thermospannung mit steigender Temperatur zu ergeben. Eine quantitative Übereinstimmung mit den Messungen bei tiefen Temperaturen konnte jedoch infolge einer störenden chemischen Reaktion zwischen Platin und Siliciumcarbid vorläufig noch nicht erreicht werden.

Sur une source d'électrons pour microscopes électroniques

par G. INDUNI (Trüb-Täuber & Cie. S. A., Zürich).

Sur des images obtenues avec un microscope électronique électrostatique à cathode froide on a mesuré un pouvoir séparateur d'une dizaine d'Ångström. (Sur une image électronique de $10000 \times$ de grossissement cela est visible à la loupe grossissante $10 \times$).

Ce fait expérimental est très remarquable pour deux raisons: D'abord parce qu'on croyait impossible de réaliser un microscope électronique à haut pouvoir résolutif avec une cathode froide¹⁾. En second lieu, supposant que toutes les aberrations soient nulles, ce qui n'est jamais le cas, il est possible d'évaluer l'ordre de grandeur maximum du chromatisme dû à la source d'électrons.

D'après DE BROGLIE, MAGNAN et CHANSON²⁾ l'aberration chromatique dans le plan de l'objet se manifeste par une variation de distance focale

$$\frac{1}{f} = p \frac{1}{v}$$

où $p \cong 5$ pour les lentilles électrostatiques conventionnelles.

Le cercle de confusion dans le plan de l'objet étant égal à $\alpha \cdot \Delta f$ on a :

$$\alpha \Delta f = \alpha f \cdot p \cdot \frac{\Delta v}{v}$$

L'appareil à cathode froide, qui a livré les images dont le pouvoir séparateur mesuré est d'une dizaine d'Ångström, a une distance focale de l'objectif électrostatique de $f = 5$ mm et une ouverture (mesurée) de $\alpha = 3 \cdot 10^{-3}$ radian. Il en résulte un

$$\frac{\Delta v}{v} = \frac{10^{-7}}{5 \cdot 0,5 \cdot 3 \cdot 10^{-3}} = \frac{10^{-4}}{7,5} \sim 10^{-5}.$$

Par cette preuve expérimentale indirecte les électrons de la source employée sont, dans le champ utile de l'objet, en tous cas monochinétiques à cette valeur près, c'est-à-dire sur les 50 000 volts accélérateurs cela revient à $\pm 0,5$ volt*). La valeur réelle de $\Delta v/v$ est sûrement plus petite à cause des aberrations de sphéricité, chromatiques dues à l'objet, etc., qui dans ce cas doivent être aussi très petites.

La structure de cette source d'électrons à cathode froide est conçue de la façon suivante: Fig. 1.

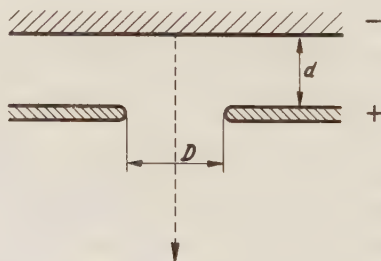


Fig. 1.

- 1° Le domaine de jonisation est séparé du domaine d'accélération des jons et des électrons.
- 2° Les dimensions des éléments séparateurs sont liées à l'intensité du champ et aux dimensions du libre parcours moyen λm des particules en jeu.

Pour obtenir ce but, j'ai trouvé la loi empirique qui impose que:

$$\boxed{d \leq \lambda m \leq D} \quad (a)$$

*) L'aberration de relativité ne jouant pas de rôle, la tension étant stable à 1 % près.

où λm = libre parcours moyen des molécules dans le tube de décharge.

Comme point de départ on peut déterminer d de façon qu'il n'y ait pas de décharge autoélectronique entre les parois des électrodes ($E/d = 100 \div 200$ kV/cm).

Avec d , au moyen de λm , la pression de service est aussi automatiquement déterminée selon la nature du gaz employé.

Avec deux ou plusieurs ouvertures D distantes entre elles de $\geq 2 \cdot \lambda m$ on obtient facilement plusieurs rayons de la même cathode, fait expérimentalement connu depuis longtemps.

Si la cathode est percée, le tube fonctionne comme remarquable source de jons très monocinétique, si on observe les conditions de la loi empirique (a).

La relation de stabilité de la décharge correspond pour une cathode matérielle à celle de SEEMANN et ORBAN

$$\alpha \delta = \ln \left(1 + \frac{1}{\gamma} \right)$$

ou à celle de HAILER pour une cathode percée

$$\alpha \delta = \ln \left(1 + \frac{1}{\beta} \right).$$

Pourtant avec une cathode matérielle, celle-ci, en service, se creuse, le spot se centre, devenant très petit (env. 0,1—0,05 mm), très stable et intense (env. 10 mA/mm²) et j'ai trouvé la curieuse relation de stabilité

$$\alpha \delta = \ln \left(1 + \frac{1}{\gamma + \beta} \right) \quad (b)$$

où $\gamma + \beta$ est une invariante, avec les notations bien connues :

α = nombre de paires de jons par électron et cm.

β = nombre d'électrons par jon (+) et cm dans le gaz.

γ = nombre d'électrons par jon (+) à la cathode.

δ = paramètre géométrique, qui tient compte de $f(D/d)$.

$\gamma + \beta$ est invariant à la condition que :

α , β , γ se produisent sensiblement hors du champ accélérateur comme il était établi d'avance.

La théorie complète de cette source extrêmement monocinétique, soit en électrons qu'en jons, est difficile à faire. J'ai pu l'ébaucher qualitativement, introduisant la notion de sphère unitaire, dont le diamètre est égal au libre parcours moyen λ_m dans le gaz du tube. Cette sphère a des propriétés intéressantes pour l'étude de la décharge. La difficulté plus grave consiste dans le fait, qu'il est difficile d'interpréter la nature du processus γ c'est-à-dire libération, direction et vitesse et nombre des électrons par le choc de jons positifs très rapides.

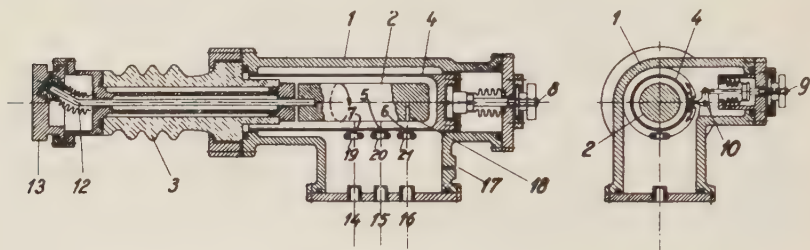


Fig. 2.

La Fig. 2 représente une source d'électrons de ce type (pour trois faisceaux) en coupe schématique. On y voit la cathode 2, l'anode 4 percée en 5, 6, 7 avec les diaphragmes limiteurs 14, 15, 16, séparant la chambre 1 du reste de l'appareil d'utilisation des faisceaux, dans lequel règne un bon vide.

Par la rentrée d'air 17 on règle la pression de décharge à la valeur imposée par la relation (a). Les diaphragmes 19, 20, 21 isolés de l'anode permettent, si besoin, d'agir avec une faible polarisation sur le (faible) champ débordant des ouvertures anodiques, et de régler entre amples valeurs indépendamment les conditions de décharge.

Etant possible, d'après (a), de réaliser facilement pour une tension de service de par exemple 50 000 volts une pression de travail de plusieurs centièmes de mm de Hg, la décharge de cette source est, grâce à la forte pression, remarquablement stable.

Cette source d'électrons (et de jons) extrêmement utile pour le microscope électronique et protonique peut, grâce à sa remarquable homogénéité, avoir un avenir pour l'excitation des cavités résonnantes, etc.

Après de longues années d'expérience sur les cathodes froides comme sources d'électrons à haute tension, nous avons, contrairement aux idées courantes, réalisé un microscope électronique avec ces cathodes perfectionnées. Les images de ce microscope ont

prouvé les remarquables qualités de ce genre de cathode. Nous avons ainsi réalisé un joli progrès dans la construction d'appareils électroniques beaucoup plus simples et aussi puissants que les appareils à cathode chaude.

BIBLIOGRAPHIE.

¹⁾ «Electron Optics and the Electron Microscope» by V. K. ZWORYKIN, New York, JOHN WILEY & SONS, Inc. 1945, p. 126. — «The Electron Microscope» by D. GABOR, Hulton Press 1944, p. 25. — «Elektronen-Überrückroskopie», M. v. ARDENNE, Berlin 1940, S. 18—19.

²⁾ «L'Optique Electronique», LOUIS DE BROGLIE, Paris 1946, p. 96.

Etude de la réaction $F^{19}(n, \alpha)N^{16}$

par E. BLEULER et J. ROSSEL.

La publication détaillée de ce travail paraîtra dans un prochain numéro de H.P.A. ¹⁾

Comptoneffekt und Emission kleiner Quanten

von RES JOST (ETH. Zürich).

Aus Resultaten von C. J. ELIEZER²⁾ kann man bei richtiger Interpretation ablesen, dass die Behandlung des Mehrfach-Comptoneffekts in der Strahlungstheorie auf ähnliche Schwierigkeiten führt, wie sie bei der Bremsstrahlung unter dem Namen „Ultrarotkatastrophe“ wohlbekannt sind³⁾. Es wird gezeigt, dass man durch die Anwendung einer kanonischen Transformation, wie sie im Falle der Bremsstrahlung von F. BLOCH und A. NORDSIECK⁴⁾ angegeben wurde, diese Schwierigkeit umgehen kann. Die Formel von KLEIN-NISHINA für den Wirkungsquerschnitt des Comptoneffektes bleibt in erster Näherung erhalten.

Eine ausführliche Arbeit erscheint demnächst in Phys. Rev.

Magnetische Momente der Kerne H_3 und He_3

FELIX VILLARS (ETH. Zürich).

Eine diesbezügliche Notiz erschien in Physical Review 72, 1. Aug. 1947. Eine ausführlichere Arbeit wird später in den H. P. A. erscheinen.⁵⁾

¹⁾ H. P. A. 20, 445 (1947).

²⁾ C. J. ELIEZER, Proc. Roy. Soc. A. 187, 210 (1946).

³⁾ Vgl. auch O. HALPERN und N. M. KROLL, Phys. Rev. 72, 82 (1947).

⁴⁾ F. BLOCH und A. NORDSIECK, Phys. Rev. 52, 54 (1937).

⁵⁾ H. P. A. 20, 476 (1947).

Über Einschaltvorgänge und Übertragungsmasse elektroakustischer Systeme

VON R. STADLIN, W. FURRER, H. WEBER und H. KÖNIG (Bern, AVF der PTT).

Es werden Methoden zur Bestimmung des Übertragungsmasses elektro-akustischer Systeme angegeben und verglichen. Die Vorname der Messungen im schallgedämpften Raum gewährleistet das Ausscheiden von Raumeinflüssen bei Frequenzen oberhalb von 100 Hz. Im Bereiche von 100 bis 10000 Hz ist eine Entzerrung des Amplitudenganges mit einfachen Mitteln leicht durchführbar, wobei die auftretenden Laufzeitdifferenzen von Kondensatormikrophon, Verstärker und Lautsprecher 0,4 bzw. 2 und 3,5 Millisekunden betragen, was auf Grund eines orientierenden Hörversuches als tragbar betrachtet werden kann, wogegen normale Raumeinflüsse wesentlich stärker ins Gewicht fallen dürften. Da die Laufzeiten nach tiefen Frequenzen hin zunehmen, ist eine Phasenentzerrung für das gesamte Frequenzband nur mit sehr grossem Aufwand möglich.

An Hand von Beispielen wird gezeigt, wie sich die Übertragungsoperatoren der einzelnen Elemente auf Grund einfacher Annahmen näherungsweise als gebrochene rationale Funktionen darstellen lassen. Mit Hilfe der so erhaltenen Formeln werden die Übertragungsfunktionen des Einheitssprunges berechnet. Für das Kondensatormikrophon und den Verstärker können Theorie und Messung zur Deckung gebracht werden, während die rechnerischen Ergebnisse für den Lautsprecher infolge der auftretenden Oberschwingungen und verwickelten Richtwirkungseffekte nur den Charakter einer groben Annäherung besitzen.

(Erscheint ausführlich in: Technische Mitteilungen der PTT, **25**, Heft 4, S. 133.)

Eine Methode zur Bestimmung von Reflexionszahlen mit Hilfe der Ulbricht'schen Kugel

VON F. MÄDER und H. KÖNIG (Bern, AMG).

(Mitteilung aus dem Eidg. Amt für Mass und Gewicht.)

Es wird eine Methode beschrieben, die mit relativ einfachen Mitteln gestattet, die Reflexionszahl für diffusen Lichteinfall unmittelbar zu bestimmen. Das Verfahren besteht im Prinzip in der Kombination zweier Versuche: Bei dem einen wird die Probe in die Kugel eingehängt, beim andern ein Teil der Wand durch die Probe ersetzt. Nach diesem Verfahren kann die Reflektionszahl von

beliebig stark reflektierenden Eichproben auf 0,003 genau ermittelt werden.

Das Verfahren wird im besonderen auf Baryt-Weiss-Platten angewendet. Bei vernünftigen Vorgehen ist *ohne* Anbringung von Korrekturen leicht eine Genauigkeit von $\pm 0,005$, nach Anbringung der Korrekturen eine solche von $\pm 0,002$ zu erreichen.

Für die von den Laboratorien der CIBA hergestellten Baryt-Platten wurden Reflexionszahlen von 0,978 (blau) bis 0,986 (rot) gemessen.

Die Arbeit erscheint ausführlich im Bulletin des Schweiz. Elektrotechnischen Vereins.

Orientierung

über die Tabellen für Buchstabensymbole und Zeichen des Schweiz. Elektrotechnischen Vereins

von H. KÖNIG (Bern).

Der Schweizerische Elektrotechnische Verein hat unter Berücksichtigung des Vocabulaire Electrotechnique International, des internationalen Wörterbuches der Lichttechnik, der Tabellen der Union internationale de Physique pure et appliquée und einer Reihe von Veröffentlichungen nationaler Ausschüsse (British Standards Association, deutscher Ausschuss für Einheiten und Formelgrößen...) in mehrjähriger Arbeit *Symboltabellen* herausgebracht, die im Bulletin des Schweizerischen Elektrotechnischen Vereins im Heft 17, 1947, als Entwurf publiziert worden sind.

Der Referent bittet alle Physiker diesem Entwurf ihre volle Aufmerksamkeit zu schenken und ihre Stellungnahme dem Sekretariat des Schweizerischen Elektrotechnischen Vereins (Seefeldstrasse 301, Zürich) bekannt zu geben.

Les formules de l'effet Doppler dans la théorie ellipsoïdale de la relativité restreinte (erreur des formules d'Einstein)

par J. DREYFUS-GRAF (Genève).

Über das Auflösungsvermögen selbstlöschender Zählrohre bei hohen Stosszahlen

von E. Baldinger und P. Huber, Basel.

(3. I. 1948.)

Zusammenfassung. Bei konstanter Zählrohrspannung ist die „dead-time“ von der Impulshöhe abhängig. Die Abhängigkeit wurde mit einer modifizierten STEVERschen Anordnung gemessen. Mit zunehmender Stosszahl werden die Zählrohrimpulse und damit die „dead-time“ im Mittel kleiner. Aus diesen Messungen lassen sich die Zählverluste bei hohen Stosszahlen berechnen. Abschliessend wird die „dead-time“ für verschiedene Füllgase gemessen.

Der Ionenschlauch, der sich längs des Drahtes eines selbstlöschenden Zählrohres ausbildet, bewirkt nach STEVER¹⁾ eine so

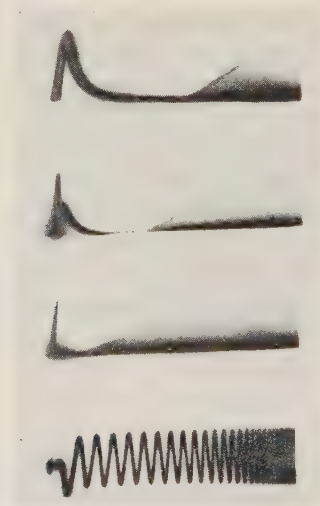


Fig. 1.

Abhängigkeit der „dead-time“ von der Höhe der Zählrohrimpulse.

starke Abschirmung, dass das Zählrohr nach jedem Stoss für eine bestimmte Zeit (dead-time) unempfindlich ist. In der anschliessenden „recovery-time“ ist die Feldstärke am Draht soweit angestiegen, dass bereits wieder Impulse registriert werden können. Die volle

¹⁾ H. G. STEVER, Phys. Rev. **61**, 38 (1942).

Impulshöhe wird indessen erst erreicht, wenn die Ionenwolke auf der Zählrohrwand eintrifft.

Es ist bekannt, dass ein Zählrohr bedeutend mehr Ereignisse registrieren kann als der „dead-time“ entspricht, die für kleine Stosszahlen auftritt²⁾. Die Ursache ist darin zu suchen, dass bei grossen Stosszahlen praktisch alle Impulse in die „recovery-time“ fallen. Durch die noch zur Kathode laufenden Ionen, erzeugt durch frühere Impulse, ist die Feldstärke am Draht reduziert, und der neu gebildete Ionenschlauch enthält eine geringere Ladung. Wie unsere Messungen zeigen (Fig. 1), besitzen die kleineren Impulse eine kürzere „dead-time“. Es existiert zu jeder Ladungsmenge bzw. Impulshöhe eine definierte „dead-time“, die unabhängig ist von der sich noch unterwegs befindlichen Ladung.

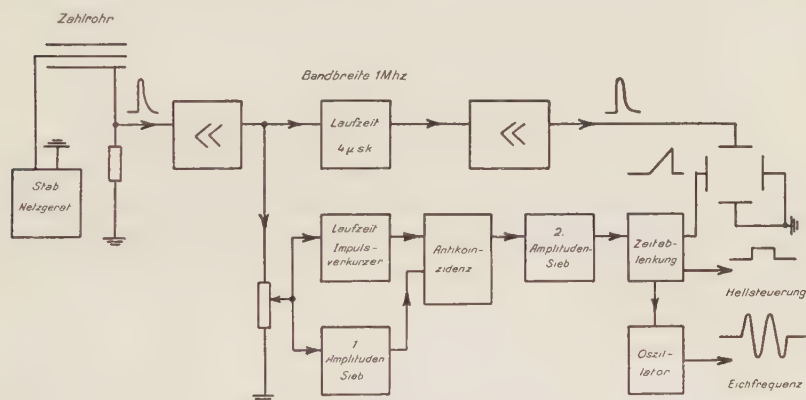


Fig. 2.

Blockdiagramm der Messanordnung.

Mit Hilfe der Messanordnung Fig. 2 wurde die „dead-time“ in Abhängigkeit der Impulshöhe bei konstanter Zählrohrspannung aufgenommen. Es handelt sich im wesentlichen um die „STEVER'sche Anordnung“³⁾, die indessen derart erweitert wurde, dass die einmalige Zeitablenkung der Kathodenstrahlröhre nur durch eine definierte und einstellbare Impulshöhe ausgelöst wird. Die verstärkten Impulse werden solange von der Antikoinzidenzstufe durchgelassen, als sie eine bestimmte Höhe nicht überschreiten. Bei grösseren Impulsen leitet das Amplitudensieb 1, und die Antikoinzidenzstufe sperrt. Mit Hilfe des 2. Amplitudensiebes werden die kleineren Impulse weggenommen und die Breite des Intervalls eingestellt. Die

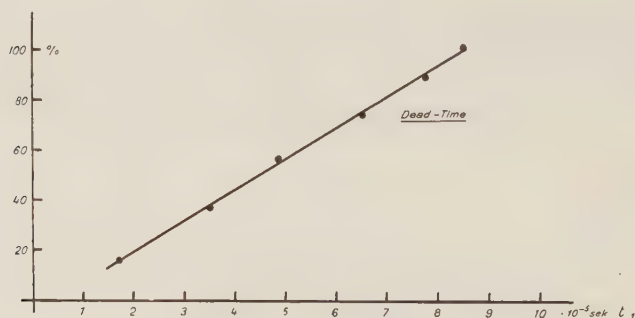
²⁾ C. O. MUELHAUSE and H. FRIEDMAN, Rev. Sci. Inst. **17**, 506 (1946).

³⁾ H. G. STEVER, Phys. Rev. **61**, 38 (1942).

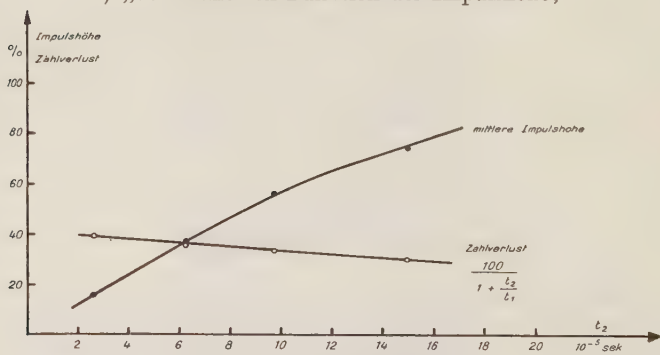
durchgelassenen Impulse bringen die Zeitablenkung zum Ansprechen.

Zur Feststellung, ob ein Impuls das Intervall durchschreitet oder darin umkehrt, ist eine gewisse Zeit notwendig. Die x -Ablenkung des Oszillographen muss deshalb etwas verspätet erfolgen. Diese zeitliche Verzögerung wird durch ein Filter mit einer oberen Grenzfrequenz von 4 MHz und einer Laufzeit von $4 \mu\text{sec}$ in der Zuleitung

Impulshöhe



a) „dead-time“ in Funktion der Impulshöhe;



b) Mittlere Impulshöhe und Zählverluste in Funktion von t_2 .

Fig. 3.

Zählrohrdaten: 0,5 cm Hg $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$; 8,3 cm Hg Argon; 0,1 mm Draht- \varnothing ; 18 mm Wand- \varnothing .

zu den y -Platten der BRAUN'schen Röhre ausgeglichen. Als Zeitmarke dient die Spannung eines durch positive Rückkopplung entdämpften Schwingkreises, der während jeder Ablenkung zu einer ungedämpften Schwingung angeregt wird.

Fig. 3a zeigt die gemessene „dead-time“ t_1 als Funktion der Impulshöhe. Mit kleiner werdenden Impulsen nimmt die „dead-

time“ beträchtlich ab. Die Messpunkte liegen für die untersuchten Zählrohre auf Geraden.

Für die prozentualen Zählverluste bei hohen Stosszahlen ist das Verhältnis $t_1:t_2$ in Fig. 4 massgebend, wobei t_2 dem mittleren Zeitintervall der zu registrierenden Ereignisse entspricht, die eine mittlere Impulshöhe h und eine mittlere „dead-time“ t_1 zur Folge haben.

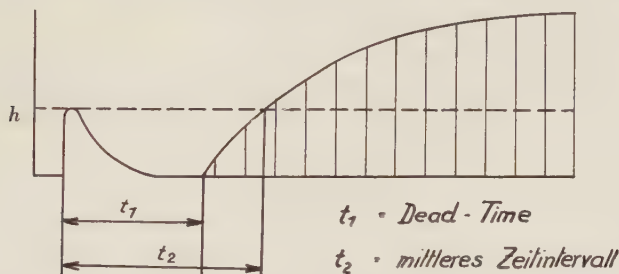


Fig. 4.

Schematische Darstellung zur Berechnung der Zählverluste.

Die experimentell bestimmte mittlere Impulshöhe in Abhängigkeit von t_2 ist in Fig. 3b aufgezeichnet. In erster Näherung berechnen sich die Zählverluste unter der Voraussetzung, dass auch die kleinsten Impulse in der „recovery-time“ gezählt werden zu (Fig. 4):

$$\frac{n-n'}{n} = n' \cdot t_1 = \frac{t_1}{t_1+t_2} \quad (1)$$

wobei $n = \frac{1}{t_2}$ ist.

Dabei bedeuten n die mittlere Zahl der Ereignisse pro Sekunde und n' die im Mittel pro Sekunde tatsächlich gezählten Ereignisse. Es zeigt sich experimentell, dass das Verhältnis der Zeiten $t_2:t_1$ nur wenig von der Impulshöhe h abhängig ist. Somit sind die prozentualen Zählverluste bei hohen Stosszahlen ungefähr konstant und müssen nach dieser Schätzung kleiner als 50% sein (vgl. Fig. 3b), was mit den Messungen von MUELHAUSE und FRIEDMAN²⁾ übereinstimmt.

Um die obige Schätzung (Gleichung 1) zu prüfen, haben wir die Zählverluste experimentell bestimmt. Zwei Radiumpräparate werden zunächst so aufgestellt, dass sie im Zählrohr dieselben Stosszahlen erzeugen. Mit kleinen Stosszahlen beginnend, bei denen nur geringe Zählverluste auftreten, werden die Stosszahlen durch neue Stellungen der Präparate verdoppelt. Die Untersuchungen haben wir an einem Zählrohr mit der „dead-time“ T von ungefähr 10^{-4} sec durchgeführt und die Verluste bis zu gezählten Stosszahlen von

50000 Impulsen/sec festgestellt. T bedeutet dabei die „dead-time“ für kleine Stosszahlen. Ein übersteuerbarer Breitbandverstärker mit einer Bandbreite von 1,5 MHz verstärkt die Zählrohrimpulse. Zu ihrer Registrierung dient ein 2^{15} fach Untersetzter mit einem Auflösungsvermögen von 10^{-6} sec. Die Messungen ergaben bei hohen Stosszahlen etwas grössere Verluste als Gleichung 1 erwarten liess. Die neu hier beschriebene Methode ermöglicht es also, die Zählverluste einfach und rasch abzuschätzen.

Ausser der „dead-time“ bewirkt auch die Plateauneigung des Zählrohrs Zählverluste, die durch die vorliegenden Überlegungen (Gleichung 1) nicht erfasst werden. Die Plateauneigung kann folgende Ursachen besitzen:

a) Nachentladungen. In den benützten Zählrohren waren keine Nachentladungen mehr zu beobachten. Dies wurde experimentell bestimmt durch Aufnahme des Plateaus bei geringer Stosszahl. Zur gleichzeitigen Registrierung der Impulse dienten zwei Untersetzter mit 10^{-3} bzw. 10^{-6} sec Auflösungsvermögen, deren Angaben keine Differenzen zeigten.

Tabelle 1.

Z. R.	Alkohol- druck cm Hg	Füllgas	Total- druck cm Hg	dead-time für kleine Stosszahlen 10^{-5} sec	Spannung Volt
I	1	Argon	8,5	9,5	1000
II	1		8,5	5	990
I	1	Rein-Stickstoff	8,2	6	1300
II	1		8,2	3,2	1400
I	1,1	Helium	8,3	6,8	1150
II	1,1		8,3	3,1	1150
I	1	Wasserstoff	8	2,25	1000
II	1		8	1,75	1015

Zählrohr I: Aluminiumrohr 18 mm Durchmesser
Platindraht 0,1 mm Durchmesser

Zählrohr II: Messingrohr 13 mm Durchmesser
Stahldraht 0,2 mm Durchmesser.

b) Randeffect. Mit steigender Zählrohrspannung vergrössert sich das Zählvolumen. Der Anteil des Randeffectes am Plateauanstieg wurde durch eine Differenzmessung (lokale und räumlich gleichmässige Bestrahlung des Zählrohrs) experimentell bestimmt. Die relative Zunahme $\frac{\Delta n}{n}$ der Stosszahl eines Zählrohres mit einer ak-

tiven Länge von 8 cm und den in Fig. 3 angegebenen Daten beträgt $2 \cdot 10^{-4}$ pro Volt.

c) Die gemessene Plateauneigung lässt sich mit a) und b) nicht restlos erklären. Nach Abzug des Anteils vom Randeffect bleibt noch eine Neigung von $1,6 \cdot 10^{-4}$ pro Volt übrig, deren Ursache vorläufig nicht aufgeklärt werden konnte.

Zur Registrierung von grossen Stosszahlen ist eine möglichst kleine „dead-time“ erwünscht. Die „dead-time“ ist von der Art der Füllgase abhängig. Sie ist in Tabelle 1 für kleine Stosszahlen und verschiedene Füllgase angegebenen. Grosse Beweglichkeit der Ionen und kleine Ladung des Ionenschlauches bewirken eine kleine „dead-time“.

Von den untersuchten Gasen besitzt ein Zählrohr mit Wasserstoff als Füllgas die kleinste „dead-time“. Bei Wasserstofffüllung kann mit geringerem Alkoholzusatz der in Tabelle 1 angegebene Wert noch unterschritten werden. Dabei treten jedoch Nachentladungen auf. Es ist bemerkenswert, dass ein mit Helium gefülltes Zählrohr eine relativ lange „dead-time“ aufweist. Sie rührt daher, dass die Impulse eine grosse Ladung besitzen.

Wir danken Herrn E. WÜRGER für die Ausführung verschiedener Messungen.

The Magnetic Exchange Moments for H_3 and He_3

by Felix Villars.

(12. IX. 1947.)

Zusammenfassung. Es wird gezeigt, dass im Grundzustand des 3-Nukleon-Systemes der Ladungsaustausch einen Beitrag zum magnetischen Moment gibt. Die Rechnung wird auf Grund der symmetrischen Pseudoskalartheorie durchgeführt. Eine rohe Abschätzung ergibt für den Betrag des magnetischen Austauschmomentes $\sim \frac{1}{3}$ Kernmagneton, ferner positives Vorzeichen für H_3 , negatives für He_3 . Dieser Befund erlaubt eine Interpretation der Messung von μ_{H_3} durch BLOCH und ANDERSON.

Summary. Charge exchange is shown to give a contribution to the magnetic moment of the three-body system in its ground state. A calculation, carried through for the case of the symmetrical pseudoscalar meson theory gives a value of $\sim \frac{1}{3}$ of a nuclear magneton for this exchange moment. The sign is positive for H_3 , negative for He_3 . This result furnishes an interpretation of the value of μ_{H_3} measured by BLOCH and ANDERSON.

§ 1. Introduction.

Recently, the ratio of the magnetic moments of the H_3 -nucleus and the proton has been measured¹⁾ by the nuclear induction method, with the result that

$$\mu_{H_3} = 1.0666 \mu_P,$$

or, taking a value of 2.789 n. m. for the proton moment:

$$\mu_{H_3} = \mu_P + 0.186 \text{ n.m.}$$

A value $\mu_{H_3} = \mu_P$ was to be expected if the H_3 -ground state were a pure 2S -state. This is not quite true, since the spin-orbit coupling (tensor force) gives rise to small admixtures of higher states (2P , 4P , 4D). But these admixtures can hardly be made responsible for the excess $\mu_{H_3} - \mu_P$, on the contrary, as was shown by SACHS and SCHWINGER²⁾, they even reduce the magnetic moment*).

*) Recently R. G. SACHS³⁾ has discussed the conditions under which the admixtures would be able to give the correction required by the experiment. This correction can only be obtained with the help of the 2P - 4P interference term, but this requires that the 2P and 4P admixtures are relatively strong (20% and 8%, respectively). However, such an assumption can hardly be justified.

However, SCHWINGER's phenomenological formalism⁴⁾ is not fitted to the description of the charge exchange phenomena connected with the interactions of nucleons. On the other hand, these phenomena are known to give rise to exchange moments⁵⁾. In the case of the Deuteron, the magnetic exchange moment vanishes on account of the symmetry properties of the Deuteron ground-state. It will be shown that this is not the case for the ground state of the three body system.

The following investigation will be carried through for the case of the symmetrical pseudoscalar meson theory which, apart from the fundamental r^{-3} difficulty in the tensor force potential, is known to give the best qualitative agreement with experiment.⁶⁾ Below, we shall presuppose that the influence of the spin-orbit coupling is small and does not mix up the ordering of the energy levels as given by the central force approximation. It may, however, affect to a certain degree the expectation value of the exchange moment, since the diagonal element $\langle {}^2S | M_{\text{exch}} | {}^2S \rangle$ will prove to be rather small; but we think that at present our still incomplete knowledge of the H_3 and He_3 ground-state eigenfunction does not justify a more detailed investigation. The result is therefore merely supposed to give the sign and the order of magnitude of the effect to be expected.

§ 2. The Magnetic Exchange Moment in the Pseudoscalar Theory.

We start with the well known Hamiltonian of the symmetrical pseudoscalar theory⁷⁾:

$$H = \frac{1}{2} \sum_{\alpha=1}^3 \int d^3x \{ \pi_{\alpha}^2(x) + |\text{grad } \varphi_{\alpha}(x)|^2 + \mu^2 \varphi_{\alpha}^2(x) \} \\ + \sqrt{4\pi} \int \sum_{A,z} \tau_{\alpha}^A (\sigma^A \cdot \text{grad } \varphi_{\alpha}(z^A)). \quad (1)$$

z^A is the position of the nucleon A , φ_1 and φ_2 are the charged fields and the connection with the fields φ and φ^* of the charged theory is given by

$$\varphi = 1/\sqrt{2} \cdot (\varphi_1 - i \varphi_2) \quad \varphi^* = 1/\sqrt{2} \cdot (\varphi_1 + i \varphi_2).$$

The charge and current densities due to the fields φ_1 φ_2 are:

$$\varrho_M = e \cdot (\dot{\varphi}_2 \varphi_1 - \dot{\varphi}_1 \varphi_2) \\ s_M = e \cdot \{ (\varphi_2 \text{grad } \varphi_1 - \varphi_1 \text{grad } \varphi_2) - \sqrt{4\pi} \int \sum_A \sigma^A \delta(x - z^A) \cdot (\varphi_1 \tau_2^A \cdot \varphi_2 \tau_1^A) \}.$$

In order to satisfy the continuity equation

$$\dot{\varrho} + \text{div } s = 0 \quad (2)$$

we must add to ϱ_M and s_M the corresponding expressions due to the charge of the nucleons:

$$\begin{aligned}\varrho_N &= e \sum_A \delta(x - z^A) \frac{1 + \tau_3^A}{2} \\ s_N &= e \sum_A \delta(x - z^A) \cdot z^A \frac{1 + \tau_3^A}{2}.\end{aligned}\quad (3)$$

Equation (2) is then easily verified with the help of the relation $\dot{\tau}_3^A = i[H, \tau_3^A] = 2 \sqrt{4\pi} f \cdot \sigma^A \{ \text{grad } \varphi_1(z^A) \tau_2^A - \text{grad } \varphi_2(z^A) \tau_1^A \}$. (4)

The magnetic moment operator is given by

$$M = \frac{1}{2} \int dv \cdot (x \times s) = \frac{1}{2} \int dv \cdot (x \times s_M + s_N) = M_M + M_N. \quad (5)$$

This expression is of course not translationally invariant; it can, however, be split into an invariant part (viz. a function of the relative position of the nucleons alone) and a part due to the motion of the center of mass of the system; this latter part is of no interest to us. The evaluation of M_M is most easily accomplished in the momentum space, where the Hamiltonian (1) reads:

$$\begin{aligned}H &= \frac{1}{2} \sum_{\alpha} \int d^3k \{ p_{\alpha}(k) \cdot p_{\alpha}(-k) + k_0^2 q_{\alpha}(k) \cdot q_{\alpha}(-k) \} \\ &+ \frac{if}{\pi\sqrt{2}} \int d^3k \sum_{A,\alpha} \tau_{\alpha}^A(\sigma^A \cdot k) \cdot e^{ikz^A} q_{\alpha}(k); \quad k_0^2 = \mu^2 + k^2.\end{aligned}\quad (6)$$

A canonical transformation is then performed:

$$H' = e^{if \cdot W} H e^{-if \cdot W} = H + if[W, H] - \frac{1}{2} f^2 [W[W, H]] + \dots \quad (7)$$

which, in a first approximation (up to terms in f^2) gives a separation of H into a free-meson part and an interaction energy between the nucleons. The transformation function W is

$$W = \frac{i}{\pi\sqrt{2}} \sum_{A,\alpha} \int d^3k \frac{p_{\alpha}(k)}{k_0^2} e^{-ikz^A} \tau_{\alpha}^A(\sigma^A \cdot k). \quad (8)$$

The transformation (7), (8) will likewise be applied to M_M , which is of the form $M_M = M^{(0)} + f \cdot M^{(1)}$. Arranging M'_M according to powers of f , we have

$$\begin{aligned}M'_M &= M^{(0)} + f \{ i[W, M^{(0)}] + M^{(1)} \} + f^2 \left\{ \frac{-1}{2} [W[W, M^{(0)}]] + i[W, M^{(1)}] \right\} \\ &= M'^{(0)} + f \cdot M'^{(1)} + f^2 \cdot M'^{(2)}.\end{aligned}\quad (9)$$

$M^{(0)}$ is the contribution of the free mesons and will therefore be neglected; the expectation value of $M^{(1)}$ is zero since this expression is linear in the field variables; $M^{(2)}$ is a function of the nucleon coordinates alone and represents the so-called exchange moment. Its evaluation is straightforward and yields

$$M_{\text{exch}} = -\frac{e(f\mu)^2}{2} \sum_{A < B} (\tau^A \times \tau^B)_3 \left\{ \frac{1}{\mu} \left[\frac{z^{AB} (z^{AB}, \sigma^A \times \sigma^B)}{r_{AB}^2} \left(1 + \frac{1}{\mu r_{AB}} \right) - (\sigma^A \times \sigma^B) \right] e^{-\mu r_{AB}} + 1/2 (z^A + z^B \times z^{AB}) \cdot V(AB) \right\},$$

where $z^{AB} = z^A - z^B$, $r_{AB} = |z^{AB}|$ and $V(AB)$ is the interaction energy of the pseudoscalar theory

$$V(AB) = \frac{1}{3} (\sigma^A \cdot \sigma^B) + \left(\frac{1}{3} + \frac{1}{\mu r_{AB}} + \frac{1}{(\mu r_{AB})^2} \right) \cdot T_{AB} \frac{e^{-\mu r_{AB}}}{r_{AB}},$$

$$T_{AB} = 3 \frac{(\sigma^A \cdot z^{AB})(\sigma^B \cdot z^{AB})}{r_{AB}^2} - (\sigma^A \cdot \sigma^B).$$

With the help of the expression for the total current S_M :

$$S_M = -e(f\mu)^2 \sum_{A < B} (\tau^A \times \tau^B)_3 z^{AB} \cdot V(AB) = e \sum_A z^A \cdot \frac{\dot{\tau}_3^A}{2}$$

and with the notation $z^A = Z + \zeta^A$, (Z = center of mass of the system) we can split from M_M the part

$$\frac{1}{2} (Z \times S_M) = \frac{e}{2} \sum_A (Z \times \zeta^A) \frac{\dot{\tau}_3^A}{2}. \quad (10)^*$$

*) It may be noted that the expectation value of (10) is cancelled by a contribution from the orbital part of the magnetic moment

$$M_{\text{orb}} = \frac{e}{2} \sum_A (z^A \times \dot{z}^A) \frac{1 + \tau_3^A}{2}$$

$$= \frac{e}{2} \left(Z \times \sum_A \zeta^A \frac{1 + \tau_3^A}{2} \right) + \frac{e}{2} \sum_A (\zeta^A \times \dot{\zeta}^A) \frac{1 + \tau_3^A}{2} + \frac{e}{2} \left(\sum_A \frac{1 + \tau_3^A}{2} z^A \times \dot{Z} \right).$$

The first term gives, together with $\frac{1}{2} (Z \times S_M)$, the expression

$$\frac{e}{2} \left(Z \times \frac{d}{dt} \left(\sum_A \zeta^A \frac{1 + \tau_3^A}{2} \right) \right),$$

whose expectation value vanishes; the second term represents the intrinsic orbital moment and the third the moment due to the motion of the center of mass.

The remainder depends only on the relative positions of the nucleons and it is this part which will be called exchange moment below. Thus finally we may write

$$M_{\text{exch}} = -\frac{e(f\mu)^2}{2} \sum_{A < B} (\tau^A \times \tau^B)_3 \left\{ \frac{1}{\mu} \left[\frac{z^{AB}(z^{AB}, (\sigma^A \times \sigma^B))}{r_{AB}^2} \left(1 + \frac{1}{\mu r_{AB}} \right) - (\sigma^A \times \sigma^B) \right] e^{-\mu r_{AB}} + 1/2 (\zeta^A + \zeta^B \times z^{AB}) \cdot V(AB) \right\}, \quad (11)$$

in accordance with MÖLLER-ROSENFELD's result*).

§ 3. The Eigenstates of a System of Nucleons in the Central Force Approximation.

In this approximation, the tensor force is entirely neglected; the interaction energy takes then the form

$$V = \sum_{A < B} (\tau^A \cdot \tau^B) \cdot (\sigma^A \cdot \sigma^B) \cdot U(AB), \quad (12)$$

in which, for not too small distances r_{AB} , $U(AB)$ is YUKAWA's potential function $\text{const. exp}(-\mu r_{AB}) \cdot r_{AB}^{-1}$.

We shall first discuss in a somewhat more general manner the properties of the eigenstates of a system with an interaction given by (12). The Hamiltonian

$$H = \sum_A \frac{1}{2M} p_A^2 + V$$

of the system is invariant under simultaneous rotations of all spin or all isotopic spin vectors. The quantities

$$S_k = 1/2 \sum_A \sigma_k^A \quad S^2 = \sum_k S_k^2$$

and

$$T_\alpha = 1/2 \sum_A \tau_\alpha^A \quad T^2 = \sum_\alpha T_\alpha^2$$

are therefore integrals of motion and define the quantum numbers S, M and T, N , M and N being the eigenvalues of S_3 and T_3 respectively. The corresponding eigenfunctions of S^2 , S_3 and of T^2 , T_3 will be written as

$$\xi^{S, M} \quad \text{and} \quad \eta^{T, N} \quad \text{respectively.}$$

*) Note that in MÖLLER-ROSENFELD's paper⁴) a different definition of $\tilde{\varphi}$ ($\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3$) and τ is utilized. Our vectors $\tilde{\varphi}$ and τ are obtained from M - R 's by a rotation of π around the 1-axis: $\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3 \rightarrow \varphi_1, -\varphi_2, -\varphi_3$ and $\tau_1 \tau_2 \tau_3 \rightarrow \tau_1, -\tau_2, -\tau_3$. Accordingly, in M - R 's paper the [nucleon charge is represented by $1/2 \cdot (1 - \tau_3^A)$.

As is well known⁸⁾ there exists for any pair of quantum numbers S, M or T, N a set of functions ξ_α ($\alpha = 1 \dots h_S$) and η_μ ($\mu = 1 \dots h_T$) which are transformed into each other under permutations of the spin or isotopic variables and which generate an irreducible representation of the permutation group. Let P be the permutation which transforms the set of variables $1, 2, \dots, n$ into p_1, p_2, \dots, p_n ; then we have

$$P \xi_\alpha(1 \dots n) \equiv \xi_\alpha(p_1 p_2 \dots p_n) = \sum_\beta D_{\beta\alpha}^S(P) \xi_\beta(1 \dots n) \quad (13)$$

and analogously for η . The representations D^S and D^T are uniquely determined by S, T and the number n of particles. (Equivalent representations are considered as equal.)

The $h_S \cdot h_T$ products $\xi_\alpha \cdot \eta_\mu$ are likewise transformed into each other under permutations simultaneously applied both to ξ and η . The representation $D^S \times D^T$ thus induced is in general a reducible one. Its decomposition into irreducible parts

$$D^S \times D^T = \sum_I \alpha_I \cdot D^I \quad (14)$$

is obtained by means of an orthogonal transformation $U_{\alpha\mu, \epsilon}^I$, which in the $h_S \cdot h_T$ -dimensional vector space of the $\xi_\alpha \eta_\mu$ sets up a new basis

$$\Theta_\epsilon^I = \sum_{\alpha\mu} U_{\alpha\mu, \epsilon}^I \xi_\alpha \cdot \eta_\mu. \quad (15)$$

The α_I give the number of irreducible representations D^I contained in $D^S \times D^T$ and are expressed by the formula

$$\alpha_I = \frac{1}{n!} \sum_c c \chi^S(c) \chi^T(c) \chi^I(c) \quad (16)$$

in which $\chi(c)$ are the group characters of the representations D^S, D^T and D^I , c the class of permutations and c the number of elements in c ⁹⁾.

Let \hat{I} be the symmetry class reciprocal to I , defined as follows:

$$D_{\alpha\beta}^{\hat{I}}(P) = \delta_P D_{\alpha\beta}^I(P); \quad \delta_P = \pm 1 \text{ for } \begin{cases} \text{even} \\ \text{odd} \end{cases} \text{ permutations.}$$

Let then $F_\epsilon^{\hat{I}}(1 \dots n)$ be a set of functions transforming under permutations according to $D^{\hat{I}}$:

$$P F_\epsilon^{\hat{I}}(1 \dots n) = F_\epsilon^{\hat{I}}(p \ p \dots p) = \sum_\zeta D_{\zeta\epsilon}^{\hat{I}}(P) \cdot F_\zeta^{\hat{I}}(1 \dots n). \quad (17)$$

Then it is easily verified that the sum of products

$$\Psi = \sum_\epsilon F_\epsilon^{\hat{I}}(1 \dots n) \cdot \Theta_\epsilon^I(1 \dots n)$$

is antisymmetrical under simultaneous permutations of the arguments of F and Θ .

In application to our problem let F be a function of the space coordinates alone: $F^{\hat{r}} = F^{\hat{r}}(x_1 x_2 \dots x_n)$; then

$$\psi^r = \sum_{\epsilon} F_{\epsilon}^{\hat{r}}(x_1 x_2 \dots x_n) \cdot \Theta_{\epsilon}^r$$

is antisymmetrical and the most general function satisfying the exclusion principle is therefore

$$\Psi_{\text{antis.}} = \sum_{r, \epsilon} F_{\epsilon}^{\hat{r}}(x_1 x_2 \dots x_n) \cdot \Theta_{\epsilon}^r(1 \dots n). \quad (18)$$

If we introduce the matrix elements of H with respect to the variables r and ϵ :

$$H \Theta_{\epsilon}^r = \sum_{r' \epsilon'} (r' \epsilon' | H | r \epsilon) \cdot \Theta_{\epsilon'}^{r'},$$

we obtain the following SCHROEDINGER equation for the F :

$$\sum_{r, \epsilon} \{ (r' \epsilon' | H | r \epsilon) - (r' \epsilon' | 1 | r \epsilon) \cdot E \} F_{\epsilon}^{\hat{r}}(x_1 x_2 \dots x_n) = 0. \quad (19)$$

The matrix elements $(r' \epsilon' | H | r \epsilon)$ are easily evaluated with the help of the relations

$$\begin{aligned} (\sigma^A \cdot \sigma^B) &= 2 P_{AB}^S - 1 \\ (\tau^A \cdot \tau^B) &= 2 P_{AB}^T - 1 \end{aligned} \quad (20)$$

where $P_{AB}^{S(T)}$ indicates the transposition $(1 \dots A \dots B \dots n) \rightarrow (1 \dots B \dots A \dots n)$, applied to the variables of $\xi(\eta)$. Employing (15), we obtain

$$\begin{aligned} (r' \epsilon' | H | r \epsilon) &= \sum_A \frac{p_A^2}{2M} (r' \epsilon' | 1 | r \epsilon) \\ &+ \sum_{A < B} U(AB) \left\{ \sum_{\alpha \beta \mu \nu} U_{\alpha \mu, \epsilon}^r U_{\beta \nu, \epsilon'}^{r'} (2 D_{\beta \alpha}^S(P_{AB}) - \delta_{\beta \alpha}) \cdot (2 D_{\nu \mu}^T(P_{AB}) - \delta_{\nu \mu}) \right\}. \end{aligned}$$

This expression can be simplified into

$$\begin{aligned} \sum_A \frac{p_A^2}{2M} (r' \epsilon' | 1 | r \epsilon) &+ \sum_{A < B} U(AB) \left\{ (4 D_{\epsilon' \epsilon}^r(P_{AB}) - \delta_{\epsilon' \epsilon}) \cdot (r' | 1 | r) \right. \\ &\left. - 2 \left\{ \sum_{\alpha \beta \mu} U_{\alpha \mu, \epsilon}^r U_{\beta \mu, \epsilon'}^{r'} D_{\beta \alpha}^S(P_{AB}) + \sum_{\alpha \mu \nu} U_{\alpha \mu, \epsilon}^r U_{\alpha \nu, \epsilon'}^{r'} D_{\nu \mu}^T(P_{AB}) \right\} \right\}. \quad (21) \end{aligned}$$

Provisional information concerning the ordering of the energy levels may be obtained from (21) by forming the mean values of the diagonal elements of the potential energy V for a definite class:

$$\overline{(I' | V | I')} = 1/h_T \cdot \sum_{\epsilon} (I\epsilon | V | I\epsilon). \text{ We obtain}$$

$$\overline{(I' | V | I')} = \sum_{A < B} U(AB).$$

$$\left\{ 1 + \frac{4}{h_T} \chi^I(c_2) - \frac{2}{n!} \sum_P \chi^I(P) [\chi^S(P) \chi^T(P \cdot P_{AB}) + \chi^S(P \cdot P_{AB}) \chi^T(P)] \right\}. \quad (22)^*$$

If $h_T = 1$, formula (22) may replace (21) for calculating the diagonal elements of V .

§ 4. Application to the Three-Body System.

The quantum number $S(T)$ may take the values $1/2$ or $3/2$. The corresponding states will be designated as spin (charge) doublets or quartets. The latter are symmetrical states, viz. invariant under permutations of the variables, whereas the doublet states induce the two-dimensional representation of the permutation group \mathfrak{S}_3 . The three irreducible representations of this group will be denoted as follows:

- I : the symmetrical,
- A : the antisymmetrical,
- \bar{A} : the two-dimensional representation.

In table I we give a list of the corresponding characters $\chi^{(11)}$

Table I.

Class	c	$\chi^I(c)$	$\chi^A(c)$	$\chi^{\bar{A}}(c)$
c_1 : identity . . .	1	1	1	2
c_2 : (12) (13) (23) .	3	1	-1	0
c_3 : (123) (132) . .	2	1	1	-1

*) Another formula for a rough evaluation of $(I' | V | I')$ is obtained from replacing $U(AB)$ by $U(0)$. (Long-range approximation, see e. g. FEENBERG and PHILLIPS¹⁰.) In this case, the formula

$$\sum_{P \in c} D_{\beta\alpha}^I(P) = \delta_{\beta\alpha} \chi^I(c) \cdot c / h_T$$

may be applied to (21) with $c = c_2 = (P_{AB})$; we thus obtain

$$(I' \epsilon' | V_0 | I \epsilon) = (I' \epsilon' | 1 | I \epsilon) \cdot U(0) \frac{n(n-1)}{2} \left\{ 1 + 4 \frac{\chi^I(c_2)}{h_T} - 2 \frac{\chi^S(c_2)}{h_S} - 2 \frac{\chi^T(c_2)}{h_T} \right\}.$$

The reduction of the product (14) with the help of (16) gives for $S - T = 1/2$ ($D^S - D^T = 1$): $\Delta \times \Delta = I + A + \hat{A}$. The following six cases will therefore be considered:

Table II.

Case:	a_1	a_2	a_3	b_1	b_2	c
Γ	I	A	Δ	Δ	Δ	I
$\hat{\Gamma}$	A	I	$\hat{\Delta}$	$\hat{\Delta}$	$\hat{\Delta}$	A
S	1/2	1/2	1/2	1/2	3/2	3/2
T	1/2	1/2	1/2	3/2	1/2	3/2

(Δ is self-reciprocal, viz. $\hat{\Delta}$ is equivalent to Δ .)

Let us now evaluate, for the six cases mentioned in table II, the mean values $(\bar{\Gamma} | V | I')$ according to (22):

$$\left. \begin{aligned} a_1): (I | V | I) &= +5 \cdot \sum_{A < B} U(AB) \\ a_2): (A | V | A) &= -3 \cdot \sum_{A < B} U(AB) \\ a_3): (\Delta | V | \Delta) &= +1 \cdot \sum_{A < B} U(AB) \\ b_{1,2}): (\Delta | V | \Delta) &= -1 \cdot \sum_{A < B} U(AB) \\ c): (I | V | I) &= +1 \cdot \sum_{A < B} U(AB) \end{aligned} \right\} \quad (24)$$

A more detailed investigation requires a special choice of the ξ and η . Expressed in terms of the eigenvectors $\alpha(A)$ and $\beta(A)$ of $\sigma_3^{(12)}$ and of the rotational invariant $a(AB) = \alpha(A) \beta(B) - \beta(A) \alpha(B)$, they may be written as follows:

$$\left. \begin{aligned} S = \frac{3}{2}: \quad & \xi^{3/2 \ 3/2} = \alpha(1) \alpha(2) \alpha(3) \\ & \xi^{3/2 \ 1/2} = 1/\sqrt{3} \cdot [\alpha(1) \alpha(2) \beta(3) + \alpha(1) \beta(2) \alpha(3) \\ & \quad + \beta(1) \alpha(2) \alpha(3)], \text{ etc.} \\ S' = \frac{1}{2}: \quad & \xi_1^{1/2 \ 1/2} = 1/\sqrt{6} \cdot (a(23) \alpha(1) + a(13) \alpha(2)) \\ & \xi_2^{1/2 \ 1/2} = 1/\sqrt{2} \cdot a(12) \alpha(3) \\ & \xi_1^{1/2 \ -1/2} = 1/\sqrt{6} \cdot (a(23) \beta(1) + a(13) \beta(2)) \\ & \xi_2^{1/2 \ -1/2} = 1/\sqrt{2} \cdot a(12) \beta(3). \end{aligned} \right\} \quad (25)$$

The isotopic spin functions η are built quite analogously.

The matrix $U_{\alpha\mu, \epsilon}^F$ can now be determined: U is the unit matrix except for $S = T = 1/2$. We shall give a list of the new basis vectors for this special case:

$$\begin{aligned} \Theta^I &= 1/\sqrt{2} \cdot (\xi_1 \eta_1 + \xi_2 \eta_2) & \Theta_1^A &= 1/\sqrt{2} \cdot (-\xi_1 \eta_1 + \xi_2 \eta_2) \\ \Theta^A &= 1/\sqrt{2} \cdot (\xi_1 \eta_2 - \xi_2 \eta_1) & \Theta_2^A &= 1/\sqrt{2} \cdot (\xi_1 \eta_2 + \xi_2 \eta_1) \end{aligned} \quad (26)$$

With the help of (26) all matrix elements of V can be determined. We need not go into the details of this investigation; we wish, however, to emphasize the following important result: As may be seen from table I, the character $\chi^1(c_2)$ vanishes, a fact which immediately follows from the self-reciprocity of Δ (compare (17)). On account of the orthogonality of the representation matrices $D_{\alpha\beta}(P)$, this is equivalent to the statement

$$\begin{aligned} D_{11}^A(P_{AB}) &= -D_{22}^A(P_{AB}) \\ D_{12}^A(P_{AB}) &= +D_{21}^A(P_{AB}) \end{aligned} \quad (27)$$

With the help of (27) we easily verify that the vector Θ^A (26) is an eigenvector of the operator $(\sigma^A \cdot \sigma^B)(\tau^A \cdot \tau^B)$:

$$(\sigma^A \cdot \sigma^B) \cdot (\tau^A \cdot \tau^B) \Theta^A = -3 \Theta^A.$$

The antisymmetric state a_2 is therefore an eigenstate of the system. According to (18) the corresponding space function $F(x_1 x_2 x_3)$ is symmetrical in 1, 2, 3. Because the kinetic energy takes its minimum value for space symmetrical states and because of the low value of the potential energy (24) for a_2 , we conclude that a_2 represents the ground-state of the three body system.

This assumption is strongly supported by the values of the spin contribution to the magnetic moment of the system:

$$\begin{aligned} M_{\text{spin}} &= \sum_A \sigma^A (1/2 \cdot (\mu_P + \mu_N) + 1/2 \cdot (\mu_P - \mu_N) \tau_3^A) \\ &\quad - (\mu_P + \mu_N) \cdot \tilde{S} + 1/2 \cdot (\mu_P - \mu_N) \sum_A \sigma^A \tau_3^A. \end{aligned} \quad (28)$$

In order to evaluate the diagonal elements of M_{spin} with respect to S and T , we note that

$$\begin{aligned} (S | \sigma^A | S) &= (\alpha | \varrho^A(S) | \alpha') \cdot \tilde{S} \\ \text{and } (T | \tau_3^A | T) &= (\mu | \varrho^A(T) | \mu') \cdot T_3^{13}. \end{aligned}$$

The matrices ϱ^A are calculated with the help of (26). We then obtain

$$(ST\alpha\mu | \sigma^A \tau_3^A | ST\alpha'\mu') = (\alpha | \varrho^A(S) | \alpha') \cdot (\mu | \varrho^A(T) | \mu') \cdot \tilde{S} T_3,$$

and from this

$$\begin{aligned} & (STT\varepsilon | \sum_A \sigma^A \tau_3^A | STT\varepsilon) \\ &= \tilde{S} T_3 \sum_{\alpha\alpha'} \sum_{\mu\mu'} U_{\alpha\mu,\varepsilon}^T U_{\alpha'\mu',\varepsilon}^T (ST\alpha\mu | \sum_A \sigma^A \tau_3^A | ST\alpha'\mu'). \end{aligned}$$

The results are given in table III: (Supposed $L = 0$, $N = -1/2$.)

Table III.

Case	$\sum_A \sigma^A \tau_3^A$	Magn. Moment	Numer. value (n. m.)
a_1	$20/3 \cdot S T_3$	$-1/3 \mu_P + 4/3 \mu_N$	-3.478
a_2	$-4 \cdot S T_3$	μ_P	+2.789
a_3	$4/3 \cdot S T_3$	$1/3 \mu_P + 2/3 \mu_N$	-0.344
b_1	$4/3 \cdot S T_3$	$1/3 \mu_P + 2/3 \mu_N$	-0.344
b_2	$4/3 \cdot S T_3$	$\mu_P + 2 \mu_N$	-1.033
c	$4/3 \cdot S T_3$	$\mu_P + 2 \mu_N$	-1.033

From table III we see that all cases besides a_2 may definitely be ruled out.

§ 5. The Expectation Value of the Exchange Moment.

The magnetic exchange moment (11) consists of two parts with different symmetry. If we take into account the results of § 4, we see that the expectation value of the part containing $(\zeta^A + \zeta^B \times z^{AB}) \cdot V(AB)$ vanishes; we can therefore restrict ourselves to the expression:

$$\begin{aligned} M'_{\text{exch}} = & -\frac{e(f\mu)^2}{2\mu} \sum_{A < B} (\tau^A \times \tau^B)_3 \left\{ \frac{z^{AB} \cdot (z^{AB}, (\sigma^A \times \sigma^B))}{r_{AB}^2} \left(1 + \frac{1}{\mu r_{AB}} \right) \right. \\ & \left. - (\sigma^A \times \sigma^B) \right\} e^{-\mu r_{AB}}. \end{aligned}$$

Our purpose is first to evaluate the matrix elements of M'_{exch} with respect to the variables S , M and T , N :

The vector products $(\sigma^A \times \sigma^B)$ satisfy the relations

$$[(\sigma^A \times \sigma^B)_i, S_k] = i \cdot (\sigma^A \times \sigma^B)_l$$

viz. the commutation rules of a vector; their diagonal elements with respect to S are consequently of the form:¹³⁾

$$(S\alpha | (\sigma^A \times \sigma^B) | S\alpha') = (\alpha | A^{AB}(S) | \alpha') \cdot \vec{S}.$$

The matrix A is easily evaluated and becomes, for $S = 1/2$:

$$\begin{aligned} (1 | A(1/2) | 1) &= (2 | A(1/2) | 2) = 0, \\ (1 | A(1/2) | 2) &= -(2 | A(1/2) | 1) = 4i/\sqrt{3}, \end{aligned} \quad (29)$$

for each $AB = 12, 23, 31$.

Taking into account the complete symmetry in the description of the spin and the isotopic spin, we have at once

$$(T\mu | (\tau^A \times \tau^B)_3 | T\mu') = (\mu | A(T) | \mu') \cdot T_3.$$

The evaluation of $z^{AB} \cdot (z^{AB}, (\sigma^A \times \sigma^B))$ may be carried through in the following manner: We introduce the total orbital angular momentum \vec{L} and the total angular momentum $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$. Then $(z^{AB}, (\sigma^A \times \sigma^B))$ is evaluated by means of the well known formulas for the scalar product¹⁴⁾ and finally the diagonal element of the complete expression with respect to L, S, J is formed. We thus obtain for $L = 0, J = S = 1/2$

$$(JLS\alpha | z^{AB} \cdot (z^{AB}, (\sigma^A \times \sigma^B)) | JLS\alpha')_{\substack{L=0 \\ S=1/2}} = \frac{1}{3} r_{AB}^2 (\alpha | A(1/2) | \alpha') \cdot \vec{J}$$

and therefore

$$\begin{aligned} &(\alpha \nu | M' | \alpha' \nu') = \\ &= \frac{e(f\mu)^2}{2\mu} (\alpha | A(1/2) | \alpha') \cdot (\nu | A(1/2) | \nu') \cdot T_3 \vec{J} \sum_{A < B} \frac{1}{3} \left(\frac{1}{\mu r_{AB}} - 2 \right) e^{-\mu r_{AB}}. \end{aligned}$$

In terms of the new variables $\Gamma\epsilon$, the matrix elements of M' are:

$$(\Gamma\epsilon | M' | \Gamma'\epsilon') = \sum_{\alpha\alpha'} \sum_{\nu\nu'} U_{\alpha\nu, \epsilon}^{\Gamma} U_{\alpha'\nu', \epsilon'}^{\Gamma'} (\alpha \nu | M' | \alpha' \nu').$$

We are interested in the expectation value of M' for the ground state of the three body system:

$$\left\{ \begin{aligned} \{M'\}_{av} &= - \frac{e(f\mu)^2}{2\mu} T_3 \vec{J} \sum_{\alpha\alpha'} \sum_{\nu\nu'} (\alpha | A(1/2) | \alpha') \cdot (\nu | A(1/2) | \nu') \\ &U_{\alpha\nu}^A U_{\alpha'\nu'}^A \cdot \int dv |F^1(123)|^2 \sum_{A < B} \frac{1}{3} \left(\frac{1}{\mu r_{AB}} - 2 \right) \cdot e^{-\mu r_{AB}}. \end{aligned} \right\} \quad (30)$$

From the $U_{\alpha\nu}^A$ as defined in (26) (and from (29)) it follows

$$\sum_{\alpha\alpha'} \sum_{\nu\nu'} U_{\alpha\nu}^A U_{\alpha'\nu'}^A (\alpha | A (1/2) | \alpha') \cdot (\nu | A (1/2) | \nu') = -16/3,$$

and therefore

$$\{M_{\text{exch}}\}_{\text{av}} = + \frac{8}{3} e \frac{(f\mu)^2}{\mu} N I \cdot \tilde{J}$$

$$I = \int dv |F^{\text{I}}(123)|^2 \left(\frac{1}{\mu r_{12}} - 2 \right) \cdot e^{-\mu r_{12}}. \quad (31)$$

In order to have $\{M_{\text{exch}}\}_{\text{av}}$ in units of nuclear magnetons, let us introduce the ratio γ of the nucleon mass M to the meson mass μ . Then we have

$$e \frac{(f\mu)^2}{\mu} = 2 \gamma (f\mu)^2 \cdot \frac{e}{2M} = 2 \gamma (f\mu)^2$$

nuclear magnetons. Considering still $J - S = 1/2$, we obtain for the exchange moment in nuclear magnetons

$$\mu_{\text{exch}} = + \frac{8}{3} \gamma (f\mu)^2 N I \quad (32)$$

N takes the values $+1/2$ (He_3) and $-1/2$ (H_3); I is given in (31).

Numerical evaluation

The space function F is supposed to be symmetrical in the arguments $x_1 x_2 x_3$ and to represent an S -State. We are only interested in the order of magnitude and the sign of the exchange effect; the choice of the simple trial function

$$F(123) = \text{const.} \exp \left(-\frac{\alpha}{2} (r_{12}^2 + r_{13}^2 + r_{23}^2) \right)$$

will be quite sufficient for this purpose. Since nothing precise is known about the best value for α , we calculate the integral I for different values of (μ^2/α) . By elementary methods we find

$$I(\mu^2/\alpha) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{6\alpha}{\mu^2}} + \frac{4}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{\mu^2}{6\alpha}} - \left(3 + \frac{2}{3} \frac{\mu^2}{\alpha} \right) \cdot e^{+\mu^2/6\alpha} (1 - \Phi(\mu/\sqrt{6\alpha}));$$

Φ is the Gauss error integral. The numerical values of I are:

μ^2/α :	0.5	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	7.0	10.0
I :	+0.132	-0.142	-0.227	-0.224	-0.205	-0.183	-0.156	-0.131

As to the values of γ and $(f\mu)^2$, the question arises whether the meson mass should be taken from cosmic ray data, which favour a value near $200 \text{ m}_e^{(15)}$, or the value obtained from proton-

proton scattering¹⁶), which give $\mu = 327 \text{ m}_\mu$ and $(f\mu)^2 = 1/4$. This larger value μ has again received some interest since the connection between cosmic ray mesons and the mesons responsible for the nuclear forces has become somewhat questionable¹⁷). For a meson mass of 200 m $(f\mu)^2$ would be somewhat smaller, say $1/10$. $\gamma \cdot (f\mu)^2$ varies thus from ~ 0.9 for the smallest up to ~ 1.4 for the largest mass considered. Large meson masses, however, involve larger values of μ^2/α , because the "radius" of the H_3 -nucleus will be deter-

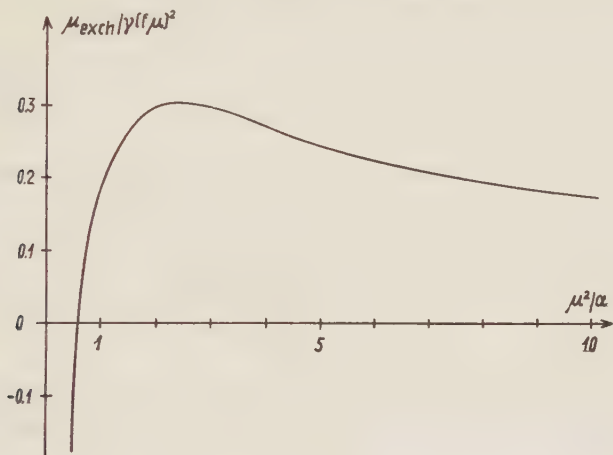


Fig. 1.

mined rather by the binding energy than by the extension of the potential well, and μ^2/α may thus vary say from 2 up to 5. A glance at fig. 1 shows then that the variation in the value of $\gamma(f\mu)^2$ is nearly compensated by a corresponding diminution of $I(\mu^2/\alpha)$. According to (32), we finally obtain for H_3 ($N = -1/2$):

$$\mu_{\text{exch}} \cong + 0.3 \text{ nuclear magnetons,}$$

a value which just fills up the gap between BLOCH's value of 2.975 n. m. and the value calculated by SACHS and SCHWINGER²) without charge exchange and for a D -state probability of 4%: $\mu = 2.71 \text{ n. m.}$

The magnetic moment of He_3 is expected to have the value $-1.86 \text{ n. m.} - |\mu_{\text{exch}}|$, viz. -2.1 n. m. (compare²)).

The author wishes to thank Professor PAULI for suggesting this problem to him, and also to thank Dr. R. JOST for many stimulating discussions.

Zurich, Physikalisches Institut E. T. H.

References.

- ¹⁾ F. BLOCH, A. C. GRAVES, M. PACKARD and R. W. SPENCE, Phys. Rev. **71**, 373, 551 (1947).
H. L. ANDERSON and A. NOVICK, Phys. Rev. **71**, 372 (1947).
 - ²⁾ R. G. SACHS and J. SCHWINGER, Phys. Rev. **70**, 41 (1946).
 - ³⁾ R. G. SACHS, Phys. Rev. **71**, 457 (1947).
 - ⁴⁾ E. GERJUOY and J. SCHWINGER, Phys. Rev. **61**, 138, (1942).
 - ⁵⁾ S. T. MA and F. C. YU, Phys. Rev. **62**, 118 (1942).
C. MØLLER and L. ROSENFELD, Kgl. Danske Vidensk. Selsk. **20**, No. 12, 1943.
W. PAULI and S. KUSAKA, Phys. Rev. **63**, 400, (1943).
 - ⁶⁾ G. WENTZEL, Rev. Mod. Phys. **19**, 1 (1947) (§§ 2 and 3, footnote page 10).
 - ⁷⁾ W. PAULI, Meson Theory of Nuclear Forces, Interscience Publ, New York.
 - ⁸⁾ E. WIGNER, Gruppentheorie und ihre Anwendung auf die Quantenmechanik der Atome, Berlin 1931.
 - ⁹⁾ A. SPEISER, Theorie der Gruppen endlicher Ordnung, Berlin, J. Springer.
 - ¹⁰⁾ E. FEENBERG and M. PHILLIPS, Phys. Rev. **51**, 597 (1937).
 - ¹¹⁾ See e. g. F. London ZS für Physik **50**, 24 (1928).
 - ¹²⁾ H. BETHE, Handbuch der Physik **24/1**, page 325.
 - ¹³⁾ W. PAULI, Handbuch der Physik **24/1**, page 181f.
 - ¹⁴⁾ E. U. CONDON and G. H. SHORTLEY, The Theory of Atomic Spectra, Cambridge 1935, page 71.
 - ¹⁵⁾ D. J. HUGHES, Phys. Rev. **71**, 387 (1947).
 - ¹⁶⁾ L. E. HOISINGTON, S. S. SHARE and G. BREIT, Phys. Rev. **56**, 884 (1939).
 - ¹⁷⁾ E. FERMI, E. TELLER and V. WEISSKOPF, Phys. Rev. **71**, 314 (1947).
-

Eine Bemerkung über die Entropie in der Wellenmechanik

von **Res Jost** (ETH. Zürich).

(9. IX. 1947.)

Die Entropie eines Ensembles mit der Dichtematrix P ist definiert als¹⁾

$$S = - \text{Spur } P \log P.$$

Dabei ist P eine positive hermitesche Matrix, deren Spur gleich 1 ist.

Vereinigt man zwei Ensembles P_1 und P_2 mit den nicht verschwindenden Gewichten α_1 und α_2 ($\alpha_1 + \alpha_2 = 1$) zu einem neuen Ensemble $P = \alpha_1 P_1 + \alpha_2 P_2$, so gilt für die resp. Entropieen S_1 , S_2 und S die bekannte Ungleichung

$$S \geq \alpha_1 S_1 + \alpha_2 S_2$$

Das Gleichheitszeichen gilt genau dann, wenn $P_1 = P_2$ ist.

Weniger bekannt scheint zu sein, dass man für S in einfacher Weise auch eine obere Schranke gewinnen kann. Es gilt nämlich:

$$S \leq \alpha_1 S_1 + \alpha_2 S_2 - \alpha_1 \log \alpha_1 - \alpha_2 \log \alpha_2 \quad (\text{I})$$

wobei das Gleichheitszeichen genau dann gilt, wenn $P_1 P_2 = 0$ ist. In dieser Note wird ein Beweis für die Ungleichung (I) gegeben. Da sich (I) unmittelbar auf die Vereinigung beliebig vieler Ensembles verallgemeinern lässt, genügt es, den Beweis für den Fall auszuführen, in welchem P_2 ein reiner Fall ist ($P_2^2 = P_2$, $S_2 = 0$).

Zum Beweis haben wir den folgenden Hilfssatz nötig:

Hilfssatz: Die Funktion $s(x_0, x_1, \dots, x_n) = - \sum_{k=0}^n x_k \log x_k$ mit $0 \leq x_k \leq 1$ ist symmetrisch und lässt sich daher als Funktion der symmetrischen Elementarfunktionen

$$\sigma_1 = \sum x_k, \quad \sigma_2 = \sum_{k < l} x_k x_l, \quad \sigma_3 = \sum_{k < l < m} x_k x_l x_m, \dots$$

auffassen. Sie ist, so betrachtet, bei konstantem σ_1 monoton zunehmend in $\sigma_2, \sigma_3, \dots, \sigma_{n+1}$.

¹⁾ Z. B. W. PAULI, Handbuch der Physik, Bd. 24/1, S. 151. Wir haben die BOLTZMANN'sche Konstante 1 gesetzt.

Wir zeigen dies dadurch, dass wir beweisen $\frac{\partial s}{\partial \sigma_k} > 0$ für $k = 2, 3, \dots, (n+1)$. Es sei

$$f(x) = \prod_{k=0}^n (x - x_k) = x^{n+1} - \sigma_1 x^n + \sigma_2 x^{n-1} \dots + (-1)^{n+1} \sigma_{n+1}$$

das Polynom mit den Nullstellen x_0, x_1, \dots, x_n . Leitet man $f(x_0) = 0$ nach σ_k ab, so erhält man¹⁾:

$$\frac{\partial}{\partial \sigma_k} f(x_0) = f'(x_0) \cdot \frac{\partial x_0}{\partial \sigma_k} + (-1)^k \cdot x_0^{n+1-k}.$$

Wegen $f'(x_0) = (x_0 - x_1)(x_0 - x_2) \dots (x_0 - x_n)$ also

$$\frac{\partial x_0}{\partial \sigma_k} = -(-1)^k \frac{x_0^{n-k+1}}{(x_0 - x_1)(x_0 - x_2) \dots (x_0 - x_n)}.$$

Damit wird

$$\frac{\partial s}{\partial \sigma_k} = (-1)^k \sum_{v=1}^n \frac{x_v^{n+1-k} (1 + \log x_v)}{(x_v - x_0) \dots (x_v - x_{v-1})(x_v - x_{v+1}) \dots (x_v - x_n)}.$$

Nun gilt nach einer Verallgemeinerung des Mittelwertsatzes der Differentialrechnung²⁾ für die rechte Seite

$$\frac{\partial s}{\partial \sigma_k} = (-1)^k \cdot \frac{1}{n!} \left[\frac{d^n}{dx^n} x^{n+1-k} (1 + \log x) \right]_{x=\xi}$$

wo $\min(x_0, \dots, x_n) < \xi < \max(x_0, \dots, x_n)$. Führt man die Differentiation aus, so ergibt sich:

$$\frac{\partial s}{\partial \sigma_k} = \frac{(n+1-k)!}{n!} \frac{1}{\xi^{k-1}} > \frac{(n-k+1)!}{n!} > 0 \text{ für } k = 2, 3, \dots \quad (1)$$

damit ist der Hilfssatz bewiesen.

Im weiteren beziehen wir uns auf eine Darstellung, in welcher P_1 und damit $\Omega_1 = \alpha_1 P_1$ diagonal sind. Die Eigenwerte von Ω_1 mögen r_1, r_2, \dots heissen. In diesem Koordinatensystem sind P_2 und damit $\Omega_2 = \alpha_2 P_2$ im allgemeinen nicht diagonal, sondern von der Gestalt $\|a_n^* a_n\|$. Schliesslich bezeichnen wir die Eigenwerte von $P = \Omega_1 + \Omega_2$ mit x_1, x_2, \dots . Es ist weiter zweckmässig, $r_0 = \alpha_2$ und $x_0 = 0$ zu setzen. Dann schreibt sich nämlich die Ungleichung (I) (für $S_2 = 0$) in der Form:

$$-\sum_{k=0}^{\infty} x_k \log x_k \leq -\sum_{k=0}^{\infty} r_k \log r_k. \quad (2)$$

¹⁾ Die folgende Überlegung gilt nur, wenn die x_k alle verschieden sind und nicht verschwinden. Doch gilt das Schlussresultat (1) aus Stetigkeitsgründen allgemein.

²⁾ Vgl. z. B. G. POLYA und G. SZEGÖ, Aufgaben und Lehrsätze aus der Analysis. Bd. I, S. 54, Aufgabe 97.

Dieser Bezeichnung entsprechend verstehen wir in der Zukunft unter den Matrizen Ω_1 , Ω_2 und P diejenigen, die aus den ursprünglichen Matrizen Ω_1 , Ω_2 und P durch Hinzufügen einer nullten Zeile und Spalte aus lauter Nullen entstehen. Wir setzen auch $a_0 = 0$.

Um unseren Hilfssatz, der sich auf eine endliche Zahl von Variablen bezieht, anwenden zu können, approximieren wir Ω_2 durch Matrizen derselben Spur, die nur endlich viele nicht verschwindende Elemente besitzen:

$$(m \mid \Omega_2(N) \mid n) = a_m^*(N) a_n(N)$$

mit

$$a_0(N) = \sqrt{\sum_{v=N+1}^{\infty} |a_v|^2},$$

$$a_n(N) = a_n \text{ für } n = 1, 2, \dots, N$$

$$a_n(N) = 0 \text{ für } n = N+1, N+2, \dots$$

Entsprechend setzen wir $P(N) = \Omega_1 + \Omega_2(N)$ und bezeichnen die zugehörigen Eigenwerte mit $x_0(N)$, $x_1(N)$, \dots .

Nun behaupte ich, dass die Folge

$$S(N) = - \sum_{k=0}^{\infty} x_k(N) \log x_k(N)$$

monoton nicht abnimmt. Da $x_k(0) = r_k$ und $\lim_{N \rightarrow \infty} x_k(N) = x_k$ ist in dieser Behauptung die Ungleichung (2) enthalten.

Zeigen wir also, dass $S(N) \geq S(N+1)$. Die Matrizen $P(N)$ und $P(N+1)$ stimmen nur in den ersten $N+2$ -reihigen Unterkasten nicht überein. Diese Unterkasten werden mit $P'(N)$ und $P'(N+1)$ bezeichnet. Ihre Eigenwerte sind die $N+2$ ersten Eigenwerte der ungestrichenen Matrizen. Es bleibt nur zu zeigen:

$$\begin{aligned} s(N) &= - \sum_{k=0}^{N+1} x_k(N) \log x_k(N) \geq s(N+1) = \\ &= - \sum_{k=0}^{N+1} x_k(N+1) \log x_k(N+1). \end{aligned} \quad (3)$$

Das geschieht auf Grund des Hilfssatzes. Es seien $\sigma_k(N)$ und $\sigma_k(N+1)$ die symmetrischen Elementarfunktionen der Eigenwerte von $P'(N)$ und $P'(N+1)$. Es gilt z. B.

$$\sigma_k(N) = \Sigma k \text{ reihigen Hauptminoren von } P'(N)$$

Durch Auswerten der Determinanten nach bekannten Regeln¹⁾ ergibt sich

$$\sigma_1(N) - \sigma_1(N+1) = 0$$

$$\sigma_2(N) - \sigma_2(N+1) = r_{N+1} |a_{N+1}|^2 \geq 0$$

$$\sigma_3(N) - \sigma_3(N+1) = r_{N+1} \sum_{k=1}^N r_k (|a_k|^2 + |a_{N+1}|^2) \geq 0$$

$$\sigma_4(N) - \sigma_4(N+1) = r_{N+1} \sum_{0 < k < l < N+1} r_k r_l (|a_k|^2 + |a_l|^2 + |a_{N+1}|^2) \geq 0$$

.....
woraus nach dem Hilfssatz (3) folgt. Weiter erkennt man, dass die $S(N)$ nur dann alle übereinstimmen, wenn für jedes k gilt $r_k |a_k|^2 = 0$. Das ist aber gleichbedeutend mit $P_1 P_2 = 0$. Damit ist der Beweis der Ungleichung (I) erbracht.

Ich danke Herrn Prof. FIERZ dafür, dass er mich auf diese Ungleichung aufmerksam gemacht hat.

¹⁾ Vgl. z. B. A. C. AITKEN, Determinants and Matrices (University Mathematical Texts), S. 87, § 37.

Die radioaktive Umwandlung des Zn^{63}

von O. Huber, H. Medicus, P. Preiswerk und R. Steffen.

(17. IX. 1947.)

Zusammenfassung. Die radioaktive Umwandlung des 38,3 Minuten Zn^{63} wird untersucht. Neben der intensiven Vernichtungsstrahlung der Positronen werden drei schwächere Kern- γ -Linien von $(0,960 \pm 0,008)$ MeV, $(1,89 \pm 0,06)$ MeV und $(2,60 \pm 0,08)$ MeV nachgewiesen. Der Konversionskoeffizient der 0,960 MeV- γ -Linie wird zu $(1,8 \pm 0,8) \cdot 10^{-4}$ bestimmt, dem für Dipolstrahlung berechneten Wert entsprechend. Die relativen Intensitäten der γ -Linien werden zu

$$J(\gamma_{0,51} \text{ MeV}) : J(\gamma_{0,96} \text{ MeV}) : J(\gamma_{1,89} \text{ MeV}) : J(\gamma_{2,60} \text{ MeV}) = 100 : 4,5 : 2 : 0,2$$

ermittelt.

Das Positronenspektrum wird ausgemessen. Seine Analyse auf Grund der FERMI'schen Theorie des Betazerfalls führt zu einer Zerlegung des Spektrums in drei Partialspektren mit Fermi-Verteilung. Die oberen Grenzen dieser Partialspektren entsprechen Übergängen in den Grundzustand des Cu^{63} und in die beiden tiefsten Niveaux, deren Anregung die Analyse der γ -Strahlung zeigt.

Durch Nachweis der Kupfer-K-Strahlung wird gezeigt, dass ein Teil der Umwandlungen des Zn^{63} auch durch Einfangen eines Hüllenelektrons erfolgt.

Die Ergebnisse werden in einem Termschema zusammengefasst. Um die Absolutintensität von Zn^{63} -Präparaten einfach messen zu können, werden Vergleichsmessungen mit einem Radiumpräparat durchgeführt. (Vgl. *Helv. Phys. Acta*, **19**, 221, 1946.)

Es wird ferner eine sekundäre γ -Strahlung nachgewiesen, welche auftritt, wenn die Positronen des Zn^{63} in Blei absorbiert werden. Die Intensität dieser Strahlung ist grösser als die Intensität, die der äusseren Bremsung der Zn^{63} -Positronen in Blei entspricht; die Differenz wird der harten Annihilationsstrahlung zugeschrieben. (Vgl. *Helv. Phys. Acta* **19**, 418, 1946.)

I. Einleitung.

Die Untersuchungen über Betastrahler, die in den letzten Jahren mit verbesserter Messtechnik durchgeführt wurden, haben insofern eine Klarstellung gebracht, als bei einigen Betastrahlern wie C^{11} , In^{114} u. a., die Ausmessung der Spektren gute Übereinstimmung mit der nach der FERMI'schen Theorie berechneten Spektrform ergab. Abweichungen von diesem Spektrtypus lassen sich bis jetzt auf zwei Umstände zurückführen. Einerseits kann das Spektrum zu einem verbotenen Übergang gehören; in der FERMI'schen Theorie treten dann die verschiedenen Kopplungsansätze in Erscheinung und wirken sich auch in der Spektrform aus. Andererseits kommt die Überlagerung von Betaspektren, die zu Übergängen in verschiedene Niveaux des Folgekernes gehören, vor.

Es handelt sich dann darum, das komplexe Spektrum zu analysieren. Der Entscheid, ob ein einfaches oder komplexes Spektrum vorliegt, ist oft nicht einfach und ohne genaue Untersuchung des Umwandlungsschemas des Betastrahlers nicht eindeutig durchführbar. Die meisten der bisher bestimmten Matrixelemente der Betaübergänge erfahren bei Berücksichtigung der Übergänge in angeregte Niveaux des Folgekernes — bei Positronenstrahlern tritt der Einfang eines Hüllenelektrons als Konkurrenzprozess hinzu — zum Teil beträchtliche Korrekturen. Damit mag vielleicht zusammenhängen, dass bis jetzt kein befriedigendes Ordnungsprinzip für die Übergangswahrscheinlichkeiten der Betastrahler gefunden wurde.

In der vorliegenden Arbeit wird die Untersuchung der Umwandlung des radioaktiven Zinkisotops der Massenzahl 63 durchgeführt. Die Umwandlung dieses Kernes erweist sich als sehr komplex.

II. Bisherige Untersuchungen des Zn^{63} .

Das radioaktive Zinkisotop, welches sich unter Positronenemission mit einer Halbwertszeit von $(38,3 \pm 0,5)$ Minuten in Kupfer umwandelt, ist eindeutig dem Zinkisotop mit der Massenzahl 63 zugeordnet worden²⁾.

Die bei der $\text{Zn}^{63}\text{-Cu}^{63}$ -Umwandlung freiwerdende Energie ist von STRAIN¹⁾ aus der Maximalenergie der Positronen zu

$$\Delta E = E_{\max} + mc^2 = (2,30 \pm 0,15) \text{ MeV} + mc^2$$

bestimmt worden. Zum gleichen Ergebnis ist der Autor durch Messen des Schwellenwertes der (p, n) -Reaktion

$$Q = (m_N - m_H) c^2 + 2 mc^2 + E(e^+)_{\max} = (4,1 \pm 0,1) \text{ MeV}$$

geführt worden. Abweichend von diesem Resultat geben DELSASSO, RIDENOUR, SHERR, WHITE³⁾ für die Maximalenergie der Positronen 1,8 MeV und für den Schwellenwert 3,6 MeV an. Eine Ausmessung des Positronenspektrums hat TOWNSEND⁴⁾ durchgeführt. Seine Messung liefert für die obere Grenze den Wert $(2,320 \pm 0,005) \text{ MeV}$. Er vergleicht auch das gemessene Spektrum mit der nach der FERMI'schen Theorie zu erwartenden Verteilung und findet, dass sie stark davon abweicht. Der Autor vermutet, dass der Grund darin zu suchen sei, dass sich zwei Teilspektren überlagern, wovon das eine von der Umwandlung über ein angeregtes Kupferniveau von 1,5 MeV herrühren sollte.

III. Herstellung der Präparate.

Die für die vorliegende Arbeit benützten Zn^{63} -Präparate wurden durch Bestrahlung von Kupfer mit 7 MeV-Protonen im Cyclotron der E. T. H. hergestellt. Der Protonenstrom betrug meistens 30 μAmp . Es fanden Präparate bis zu einigen hundert Millicurie Anfangsaktivität Anwendung. Gleichzeitig mit diesem 38,3 Minuten-Zink entsteht das radioaktive Zn^{65} von 250 Tagen Halbwertszeit. Das Vorhandensein dieser langsam abklingenden Aktivität störte bei den Messungen nicht. Wo es erforderlich war, wurden die entsprechenden Korrekturen hinsichtlich der Strahlung der langen Periode vorgenommen.

Um Zinkpräparate mit möglichst wenig absorbierender Materie zu erhalten, war es für die meisten der ausgeführten Experimente nötig, das radioaktive Zink von der bestrahlten Kupfertarget chemisch abzutrennen. Die chemischen Abtrennungen wurden von E. JACOBI ausgeführt, dem wir an dieser Stelle bestens danken möchten. Die Oberfläche der Kupfertarget wird in Königswasser abgelöst, 1 mg Eisenchlorid als Trägersubstanz beigelegt, die Säure abgeraucht und der Rückstand mit 10%iger Schwefelsäure aufgenommen. Das Kupfer wird hierauf durch Einleiten von Schwefelwasserstoff als Sulfid abgeschieden. Das Filtrat, das die Zinkionen enthält, wird zuerst mit Ammoniak alkalisch gemacht, dann mit Essigsäure schwach angesäuert und nochmals mit Schwefelwasserstoff behandelt. Das Zink fällt als Sulfid mit dem schwarzen Eisensulfidniederschlag aus.

IV. Die γ -Strahlung des Zn^{63} .

A. Die 0,51 MeV-Vernichtungsstrahlung.

Die Absorptionskurve (s. u.) der γ -Strahlung zeigt, dass bei einer beidseits mit Aluminium bedeckten Quelle 93% der γ -Aktivität, die mit einem dickwandigen Zählrohr mit Bleikathode gemessen wird, von der 0,51 MeV-Vernichtungsstrahlung der Zn^{63} -Positronen herrühren. Da die absolute Intensität der Vernichtungsstrahlung zwei Quanten pro Positronenemission beträgt und die Sensibilität des Zählrohres bekannt ist⁶⁾, konnte die absolute Intensität der Präparate aus der von der Vernichtungsstrahlung herrührenden Aktivität bestimmt werden.

B. Die 2,6 MeV- und die 1,9 MeV-Kern- γ -Strahlung.

Um zunächst festzustellen, ob das Zn^{63} neben der intensiven Vernichtungsstrahlung der Positronen noch eine harte Kern- γ -

Strahlung emittiert, haben wir die Reichweite der von einem Zn^{63} -Präparat in einer Aluminiumplatte ausgelösten Comptonelektronen bestimmt. Die Messung wurde nach der bekannten von BOTHE angegebenen Methode durchgeführt. Die von der Strahlung ausgelösten Comptonelektronen werden durch zwei in Koinzidenz geschaltete Zählrohre, zwischen welche die Aluminiumabsorber gebracht werden, registriert. Zwischen der Reichweite der Sekundärelektronen und der Quantenenergie besteht nach CURRAN, DEE, PETRZILKA⁵⁾ eine lineare Beziehung. Die Eichgerade und die Form der Absorptionskurven war für unsere Anordnung mit γ -Strahlern bekannter Energie bestimmt worden. Die Absorptionskurve der

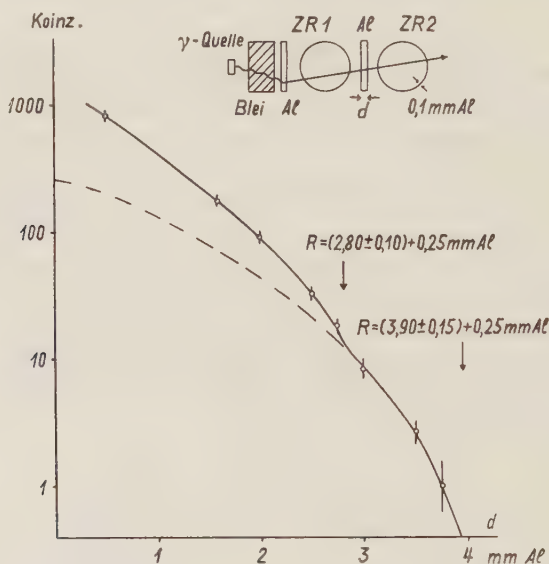


Fig. 1.

Reichweite der Sekundärelektronen der Zn^{63} - γ -Strahlung.

von der Zn^{63} - γ -Strahlung nach einer Filterung durch 6 cm Blei in Aluminium ausgelösten Sekundärelektronen ist in Fig. 1 eingezeichnet. Für die Reichweite ergibt sich ein Wert von $R = (4,15 \pm 0,15)$ mm Al, einer Quantenenergie von

$$h\nu = (2,6 \pm 0,1) \text{ MeV}$$

entsprechend. Die Umwandlung des Zn^{63} ist also mit einer Kern- γ -Strahlung verbunden, deren härteste Komponente eine γ -Linie von 2,6 MeV ist. Die Form der Absorptionskurve der Sekundärelektronen entspricht aber keiner reinen 2,6 MeV- γ -Strahlung. Die

Analyse (siehe z. B.¹⁷) zeigt, dass sich den Sekundärelektronen. herrührend von der 2,6 MeV- γ -Linie, diejenigen einer weiteren Komponente mit einer Reichweite von $(3,05 \pm 0,15)$ mm Al entsprechend einer Quantenenergie von

$$\underline{h\nu = (1,90 \pm 0,10) \text{ MeV}}$$

überlagern. Die Intensität dieser γ -Linie ist ungefähr achtmal grösser als die der energiereichsten 2,6 MeV- γ -Linie.

C. Die 0,960 MeV-Kern- γ -Strahlung.

Dass die Vernichtungsstrahlung, die 2,6 MeV und die 1,9 MeV- γ -Linien nicht die einzigen Komponenten der Zn^{63} - γ -Strahlung sein können, ergibt sich schon aus einem Vergleich der mit einem Blei- und einem Messingzählrohr registrierten Impulszahlen (siehe BRADT, GUGELOT, HUBER, MEDICUS, PREISWERK, SCHERRER⁶). Dieses Verhältnis wurde für die ungefilterte Zn^{63} - γ -Strahlung zu

$$Z_{\text{Mess}} : Z_{\text{Pb}} = 1 : (3,4 \pm 0,1)$$

bestimmt, entsprechend dem Überwiegen der 0,51 MeV-Annihilationsstrahlung. Der für die ungefilterte Strahlung gemessene Wert ist praktisch gleich dem Verhältnis der Sensibilitäten der beiden Zählrohre für Vernichtungsstrahlung. Hinter einem Filter von 5,5 cm Blei, bei dem die Vernichtungsstrahlung bereits auf rund den zehntausendsten Teil geschwächt ist, ergibt sich

$$Z_{\text{Mess}} : Z_{\text{Pb}} = 1 : 1,60.$$

Das Verhältnis der Sensibilitäten für eine 1,9 MeV- γ -Strahlung ist aber nach⁶) gleich 1 : 1,33. Der gemessene Wert 1 : 1,60 entspricht einer mittleren Energie der Zn^{63} - γ -Strahlung von 1,1 MeV.

a) Compton- und Photoelektronen.

Es muss also ausser der 2,6 MeV- und der 1,9 MeV- γ -Linie noch eine weitere energieärmere Linie in der Zn^{63} - γ -Strahlung enthalten sein. Zur weiteren Analyse der γ -Strahlung wurde in einem magnetischen Halbkreispektrographen ($\varrho = 10$ cm) das Spektrum der Sekundärelektronen ausgemessen (siehe Fig. 2). Die Compton- und Photoelektronen wurden in einem 2 mm dicken Messingplättchen ausgelöst, welches mit einer 0,06 mm dicken Goldfolie bedeckt war. Neben den Comptonelektronen (Maximalenergie 340 keV) und den in den *K*- und *L*-Schalen des Goldes ausgelösten Photoelektronen der 0,51 MeV-Vernichtungsstrahlung tritt bei den

$H\varrho$ -Werten 4315 und 4550 Oersted·cm eine weitere Photoelektronengruppe auf. Sie entspricht einer γ -Linie mit einer Quantenenergie von

$$\underline{h\nu_{\text{I}} = (0,960 \pm 0,008) \text{ MeV.}}$$

Die noch energiereicheren Comptonelektronen mit maximalen $H\varrho$ -Werten von 7000 und 9500 Oersted·cm rühren von den beiden energiereichsten Linien, deren Existenz bereits aus der Absorptionskurve der Sekundärelektronen gefolgert wurde, her. Die Spektrographenmessungen liefern übereinstimmend die genaueren Werte

$$\underline{h\nu_{\text{II}} = (1,89 \pm 0,06) \text{ MeV}}$$

und

$$\underline{h\nu_{\text{III}} = (2,60 \pm 0,08) \text{ MeV.}}$$

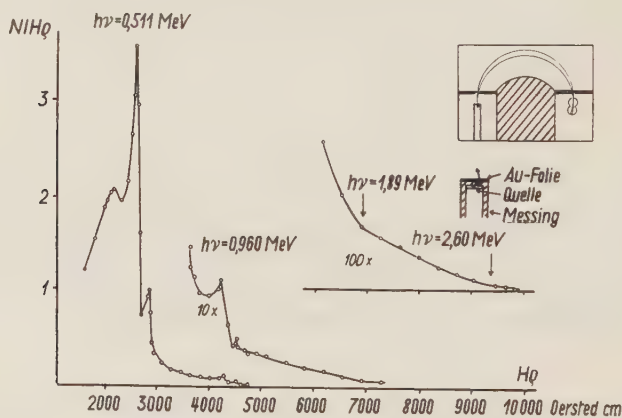


Fig. 2.

Compton- und Photoelektronen der Zn^{63} - γ -Strahlung.

b) Konversionselektronen.

Mit einem intensiven Zn^{63} -Präparat konnten im magnetischen Spektrographen Konversionselektronen der 0,960 MeV- γ -Linie beobachtet werden. Bekanntlich ist die Wahrscheinlichkeit der inneren Konversion harter γ -Linien bei Elementen niedriger Kernladungszahl nur sehr klein. Bei Verwendung genügend intensiver Präparate ist der Nachweis von Konversionslinien bei Positronenstrahlern im magnetischen Spektrographen trotzdem möglich, da ein Untergrund der Zerfallselektronen, wie er bei β -Strahlern störend in Erscheinung tritt, nicht vorhanden ist. Der durch die intensive γ -Strahlung bedingte Untergrund wird stark herabgesetzt,

wenn die Konversionselektronen mit Koinzidenzzählrohren nachgewiesen werden.

Die sehr schwache Konversionslinie des Zn^{63} (Figur 3) liegt bei einem H_Q -Wert von

$$\underline{H_Q = 4560 \text{ Oersted cm.}}$$

Die Auflösung in eine K - und L -Linie, deren Energiedifferenz entsprechend der Differenz der Bindungsenergien der K - und L -Elektronen des Kupfers 8 keV beträgt, ist angedeutet. Für die Energie der Linie ergibt sich der Wert

$$\underline{h\nu_1 = (0,960 \pm 0,008) \text{ MeV.}}$$

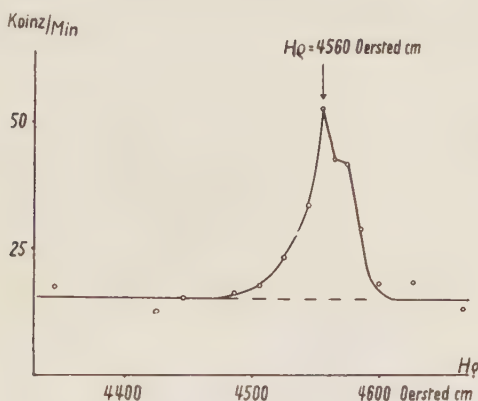


Fig. 3.

Konversionslinie der 0,960 MeV γ -Strahlung.

Mit dem gleichen Präparat, mit welchem die Konversionslinie gemessen worden war, wurde nachfolgend auch das Positronenspektrum ausgemessen. Durch Integration der beiden Spektren wurde das Verhältnis der Zahl der emittierten Konversionselektronen zur Anzahl der Positronen zu

$$\frac{N(e^-)}{N(\beta^+)} = 1,6 \cdot 10^{-5}$$

bestimmt. Wie wir im folgenden sehen werden, werden pro Positronenzerfall 0,09 Quanten der 0,960 MeV- γ -Strahlung emittiert. Der Konversionskoeffizient α , d. h. das Verhältnis der Zahl der Konversionselektronen zur Zahl der 0,96 MeV- γ -Quanten, bestimmt sich somit zu

$$\underline{\alpha_{0,96 \text{ MeV}} = (1,8 \pm 0,8) \cdot 10^{-4}.$$

Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit dem theoretisch für Dipolstrahlung zu erwartenden. Der Koeffizient der Konversion in der K -Schale beträgt nach der Formel von DANCOFF und MORRISON⁷⁾ (gültig für $Z < \sim 30$ und hohe Energien) für Dipolstrahlung, $Z = 29$ und $h\nu = 0,96$ MeV $\alpha_K = 1,9 \cdot 10^{-4}$. Der Koeffizient der Konversion in der L -Schale ist nach HEBB und NELSON⁸⁾ rund ein Zehntel des Koeffizienten der K -Schale. Es ergibt sich also für den theoretischen Wert

$$\alpha_{K+L}^{\text{theor. Dip.}} = 2,1 \cdot 10^{-4}.$$

Der Wert für Quadrupolstrahlung beträgt dagegen

$$\alpha_K^{\text{theor. Quadrup}} = 3,9 \cdot 10^{-4}.$$

Es folgt daraus, dass die 0,96 MeV- γ -Linie eine Dipolstrahlung ist.

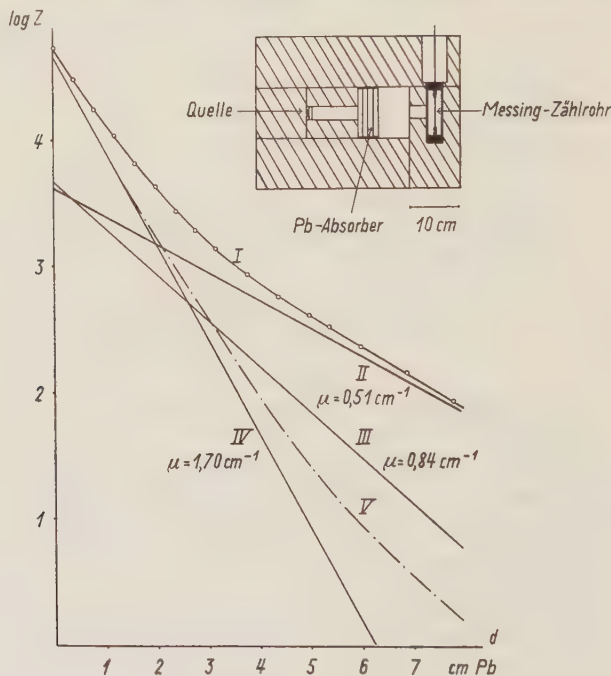


Fig. 4.

Absorption der γ -Strahlung des Zn^{63} .

(Detektor der γ -Strahlung: Zählrohr mit Messingkathode.)

D. Relative Intensitäten der Zn^{63} - γ -Linien.

Um die Intensität der aufgefundenen γ -Linien zu bestimmen, führten wir Absorptionsmessungen aus. Fig. 4 und Fig. 5 zeigen

zwei der aufgenommenen Absorptionskurven und die gewählte Messanordnung.

Die γ -Quelle mit dem Zinkpräparat befindet sich in einer Aluminiumdose, welche die Positronen absorbiert. Der Abstand vom Zählrohr beträgt 24 cm. Zählrohr und Quelle sind von Blei umgeben. Durch einen Kanal von 2,5 cm Durchmesser wird ein enges Strahlenbündel (Öffnungswinkel $2\varphi = 60^\circ$) ausgeblendet, in welches Bleiabsorber bis zu 8 cm Dicke zwischengeschaltet werden.

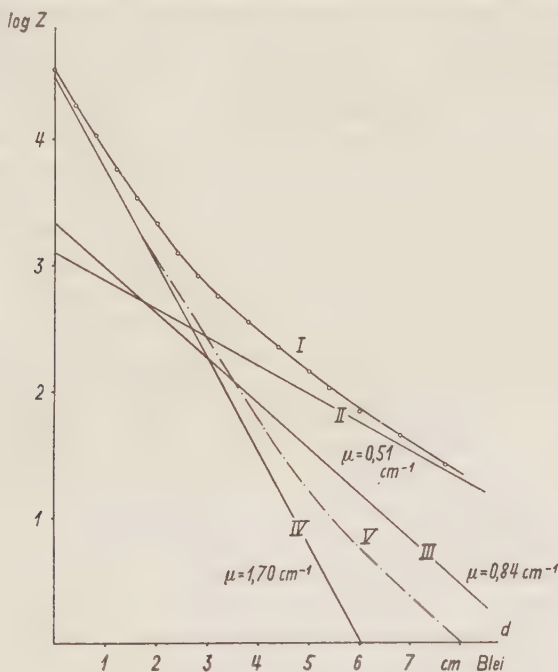


Fig. 5.

Absorption der γ -Strahlung des Zn^{63} .(Detektor der γ -Strahlung: Zählrohr mit Bleikathode.)

Da die Energie der drei Komponenten der γ -Strahlung bekannt ist, wurden die gemessenen Absorptionskurven in drei Komponenten mit den Absorptionskoeffizienten

$$\mu_{\text{Pb}}^{0,51 \text{ MeV}} = 1,70 \text{ cm}^{-1}$$

$$\mu_{\text{Pb}}^{0,96 \text{ MeV}} = 0,84 \text{ cm}^{-1}$$

$$\mu_{\text{Pb}}^{1,89 \text{ MeV}} = 0,51 \text{ cm}^{-1}$$

zerlegt. Um zu prüfen, ob bei der verwendeten Anordnung noch in merklichem Masse Streustrahlung gemessen werde, wurde unter

gleichen Bedingungen die Absorption der Vernichtungsstrahlung gemessen. Wir verwendeten für diesen Versuch als γ -Quelle das radioaktive Kohlenstoffisotop C^{11} , das keine Kerngammastrahlung emittiert. Die Abweichung der gemessenen Absorptionskurve (siehe Fig. 4, Kurve V) von einem exponentiellen Verlauf mit dem theoretischen Absorptionskoeffizienten $\mu = 1,70 \text{ cm}^{-1}$ ist nur sehr gering. Die Absorptionskurve lässt einen härteren Anteil von 0,5% Intensität erscheinen; diese Abweichung vom exponentiellen Verlauf mit $\mu = 1,70 \text{ cm}^{-1}$ ist übrigens nur zum Teil durch die Streustrahlung vorgetäuscht, zum Teil ist sie der härteren Komponente der Bremsstrahlung zuzuschreiben. Bei der Zerlegung der Absorptionskurve der $Zn^{63}\gamma$ -Strahlung wurde für die 0,51 MeV-Komponente diese experimentell bestimmte Kurve zugrunde gelegt.

Die Anordnung wurde ferner mit der γ -Strahlung des $Th (B + C + C')$ geprüft. Diese Kontrolle ergab sowohl die richtigen Absorptionskoeffizienten wie die richtigen Intensitäten der intensivsten Komponenten der $Th (B + C + C')$ γ -Strahlen⁶⁾.

Die Absorptionskurven der $Zn^{63}\gamma$ -Strahlung wurden mit einem γ -Zählrohr, dessen Kathode aus Messing, sowie einem solchen, dessen Kathode aus Blei bestand, aufgenommen. Der Verlauf der beiden Absorptionskurven (Fig. 4 und 5, Kurven I) ist voneinander verschieden, da die Sensibilitätsverhältnisse der beiden Zählrohre für die drei γ -Strahlkomponenten verschieden sind. Demnach sind die relativen Stosszahlen der drei Komponenten, in welche die beiden Kurven zerlegt werden, stark ungleich. Nach Division der Stosszahlen durch die für die beiden Zählrohre bekannten Zählrohransprechwahrscheinlichkeiten⁶⁾ ergibt sich in beiden Fällen innerhalb der Fehlergrenzen für die relativen Intensitäten der drei Komponenten das gleiche Resultat, was für die Zuverlässigkeit der Zerlegung spricht. In der folgenden Tabelle sind die Messergebnisse zusammengestellt.

	0,51 MeV	0,96 MeV	1,89 MeV
<i>Messingzählrohr</i>			
Relative Stosszahlen . . .	Z 100	8,9	8,0
Zählrohrsensibilität. . . .	$\varepsilon \quad 2,20_{00}$	$4,80_{00}$	$11,00_{00}$
Relative Zahl der emittierten Quanten	J 100	4,1	1,6
<i>Bleizählrohr</i>			
Relative Stosszahlen . . .	Z 100	5,8	3,1
Zählrohrsensibilität. . . .	$\varepsilon \quad 7,20_{00}$	$8,50_{00}$	$14,60_{00}$
Relative Zahl der emittierten Quanten	J 100	4,9	1,5
	J 100	$(4,5 \pm 0,8)$	$(1,6 \pm 0,8)$

Die Intensität der schwachen 2,60 MeV- γ -Linie hatten wir aus der Intensität der Comptonelektronen auf ein Achtel der Intensität der 1,89 MeV- γ -Linie abgeschätzt. Ihr Beitrag zur Gesamtintensität der γ -Strahlung beträgt also nur 0,2% und brauchte deshalb bei der Zerlegung der Absorptionskurve nicht berücksichtigt zu werden.

V. Das Positronenspektrum des Zn^{63} .

Es war nun das Positronenspektrum des Zn^{63} auszumessen. Verwendet wurde ein magnetischer Halbkreispektrograph mit $\varrho = 10$ cm Bahnradius. Das gemessene Spektrum ist in Fig. 6 eingezeichnet. Aufgetragen sind die Einzelstosszahlen dividiert durch $H\varrho$ in Funktion von $H\varrho$. Die Dicke der Zaponlackfolie des Zählrohrs betrug $0,3 \mu$, so dass sich eine Korrektur bezüglich der Absorption durch diese Schicht erübrigte. Das Präparat, in Form von Zinksulfid vorliegend, war mit nur sehr wenig Trägersubstanz gefällt und befand sich auf einem schmalen und dünnen Seidenpapierstreifen.

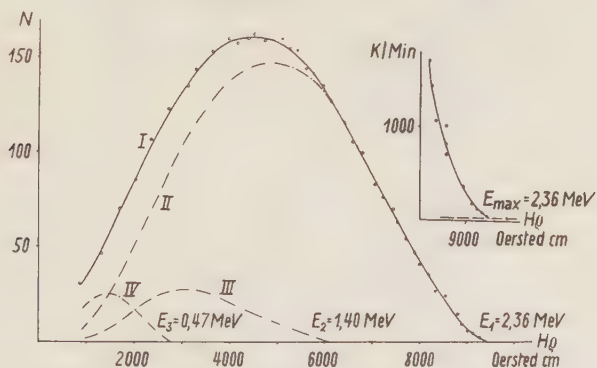


Fig. 6.

Positronenspektrum des Zn^{63} .

- I. Gesamtspektrum (gemessene Stosszahl durch $H\varrho$ dividiert).
 II. Teilspektrum 1 III. Teilspektrum 2 IV. Teilspektrum 3.

Für die Bestimmung der oberen Grenze wurden Koinzidenzen gezählt und hierfür ein Wert von

$$\underline{H\varrho_{\max} = 9420 \text{ Oersted} \cdot \text{cm}}$$

gefunden, dem eine Energie von

$$\underline{E(\beta^+)_{\max} = (2,36 \pm 0,04) \text{ MeV}}$$

entspricht.

Der Form des Spektrums sieht man nicht ohne weiteres an, ob es einfach oder komplex ist. Wie die Analyse nach FERMI zeigt, ist es sicher kein einheitliches FERMI-Spektrum. Die Gültigkeit der FERMI'schen Theorie für mittlere Kernladungszahlen und für erlaubte Übergänge scheint hinlänglich bewiesen. Bei der Zn^{63} -Umwandlung handelt es sich, wie aus dem Sargent-Diagramm ersichtlich ist, um einen erlaubten Übergang. (Das Matrixelement berechnet sich nach FERMI zu $M = 0,7$.) Der Analyse wurde die ausgezogene gemittelte spektrale Impulsverteilung der Fig. 6

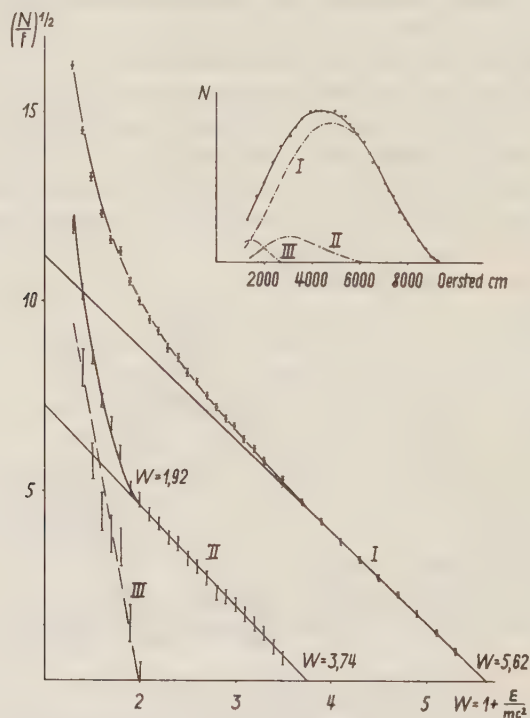


Fig. 7.

FERMI-Diagramm des Positronenspektrums des Zn^{63} .

zugrunde gelegt. Das FERMI-Diagramm (Fig. 7, Kurve I) verläuft für hohe Energiewerte geradlinig. Der extrapolierte Wert der oberen Grenze des Spektrums $W_{\max 1} = 1 + \frac{E_{\max}}{mc^2} = 5,62$ ist in sehr guter Übereinstimmung mit dem direkt gemessenen Wert $W_1 = 5,62$, entsprechend $E_{\max 1} = 2,36$ MeV. Für Energiewerte, die kleiner als $W = 4$ sind, weicht die Kurve vom geradlinigen Verlauf ab. Eine Abweichung unterhalb $W_2 = 3,74$ ist zu erwarten, da die

γ -Linie von 0,96 MeV mit einem Teilspektrum der maximalen Energie

$$E_{\max 2} = (2,36 - 0,96) \text{ MeV} = 1,40 \text{ MeV}$$

$W_2 = 3,74$, gekoppelt sein dürfte.

Zur Analyse des gemessenen Spektrums verfahren wir folgendermassen: Wir subtrahieren vom Gesamtspektrum das energiereichste Teilspektrum der Maximalenergie 2,36 MeV, für welches wir FERMI-Verteilung auch unterhalb $W = 4$ voraussetzen. Das FERMI-Diagramm des Differenzspektrums (Fig. 7, Kurve II) zeigt bei grösseren Energien wieder einen geradlinigen Verlauf. Die Stelle, wo diesmal eine Abweichung von einer Geraden eintritt, stimmt mit der Maximalenergie $W_3 = 1,92$ eines dritten Teilspektrums, das mit der 1,89 MeV- γ -Linie gekoppelt ist, überein. Es erscheint daher gerechtfertigt, auch für das zweite Teilspektrum der Maximalenergie $W_{\max 2} = 3,74$ FERMI-Verteilung vor auszusetzen.

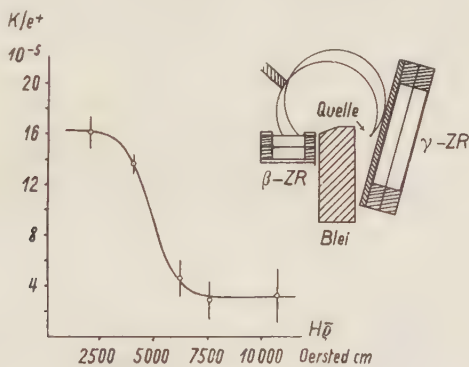


Fig. 8.

Koinzidenzen der Positronen mit Kern- γ -Strahlung.

In Übereinstimmung mit der Analyse der γ -Strahlung ist das Positronenspektrum des Zn^{63} als aus drei Teilspektren bestehend anzusehen, wovon das erste direkt in den Grundzustand des Cu^{63} , das zweite in das 0,96 MeV-Niveau und das dritte in das 1,89 MeV-Niveau führt.

Diese drei Partialspektren sind in Fig. 6 aufgetragen. Abgesehen davon, dass schon infolge der zweimaligen Differenzenbildung die Ungenauigkeit des Intensitätswerts des dritten weichen Teilspektrums am grössten ist, wird überdies vorwiegend bei diesem infolge Rückstreuung und Energieverlust der Positronen im Präparat die Intensität überschätzt. Die relativen Intensitäten ergeben sich zu:

$$N(\beta_1^+) : N(\beta_2^+) : N(\beta_3^+) = 100 : 10 : 5.$$

Auch Koinzidenzmessungen zur Untersuchung der zeitlichen Korrelation von Positronen und Kern- γ -Emission zeigen, dass ein geringer Bruchteil der Positronenemission zu angeregten Niveaux führt. Die Koinzidenzrate, d. h. die Zahl der β^+ - γ -Koinzidenzen pro gezähltes Positron wurde mit der magnetischen Halbkreispektrographen-Anordnung der Fig. 8 in Abhängigkeit der Positronenenergie bestimmt. Für H_0 -Werte, die grösseren Energien als der oberen Grenze des zweiten Teilspektrums entsprechen, hört die Koinzidenzfähigkeit der Positronen auf.

VI. K-Einfang des Zn^{63} .

Es ist zu erwarten, dass der Positronenstrahler Zn^{63} die Umwandlung in Cu^{63} auch durch Einfangen eines Elektrons der K -Schale vollziehen kann. Der K -Einfang äussert sich in der Emission der Kupfer-Röntgenstrahlung.

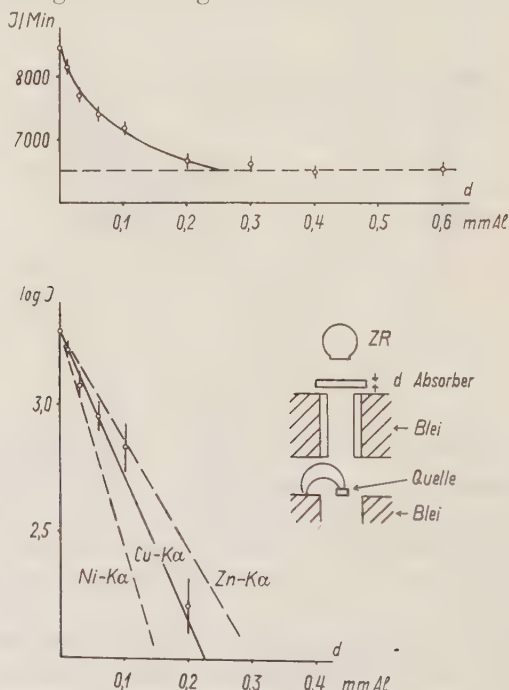


Fig. 9.

Absorption der Röntgenstrahlung des Zn^{63} . (Al-Absorber.)

Die Emission der Kupfer- K -Strahlung bei der Umwandlung des Zn^{63} konnte in der Tat nachgewiesen werden. Fig. 9 zeigt die Messanordnung. Die Positronen wurden durch ein Magnetfeld vom

Zählrohr weggelenkt, und es wurde verifiziert, dass bei der getroffenen Anordnung keine Elektronen vom Präparat, Absorber usw. ins Zählrohr gelangen konnten. Die Absorptionsmessung in Aluminium zeigt neben dem Untergrund der γ -Strahlung die Anwesenheit einer weichen Strahlung mit einem Absorptionskoeffizienten $\mu/\rho = 49,0 \text{ cm}^2/\text{g}$, welcher derjenige der Kupfer-K-Strahlung ist. Dass es sich wirklich um die Kupfer-K-Strahlung handelt, zeigt die Tatsache, dass dünne Folien von Kobalt ($0,0105 \text{ g/cm}^2$) die Röntgenstrahlen praktisch vollständig absorbieren, während Nickelfolien gleicher Dicke sehr viel durchlässiger sind (siehe

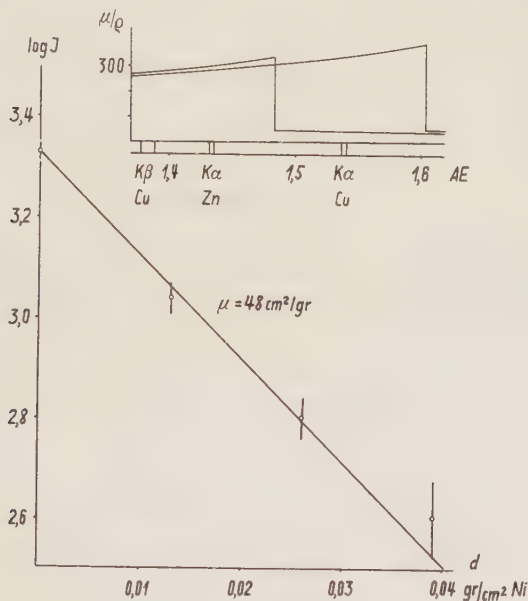


Fig. 10.

Absorption der Röntgenstrahlung des Zn^{63} . (Nickel-Absorber.)

Fig. 10). Die $K\alpha$ -Linien des Kupfers $K\alpha_1$, $\lambda = 1,5412 \text{ AE}$, $K\alpha_2$, $\lambda = 1,5374 \text{ AE}$ liegen zwischen den K -Absorptionskanten des Kobalts $\lambda = 1,6040 \text{ AE}$ und des Nickels $\lambda = 1,4839 \text{ AE}$.

Da keinerlei intensive Konversionslinien vorhanden sind, ist die Kupfer-K-Strahlung das Anzeichen einer Umwandlung des Zn^{63} durch K -Einfang in einem gewissen Bruchteil der Zerfallsprozesse.

Aus den relativen Intensitäten der Vernichtungsstrahlung und Röntgenstrahlung kann die relative Wahrscheinlichkeit des K -Einfangs grob zu 5—10% abgeschätzt werden.

Die Werte für die relativen Wahrscheinlichkeiten des K -Einfangs, die sich aus der FERMIschen Theorie des Betazerfalls für erlaubte Übergänge berechnen lassen (MØLLER⁹), sind:

Übergang	Rel. Wahrscheinlichkeit von K -Einfang und β^+ -Emission
1. $\text{Zn}^{63} - \text{Cu}^{63}$	$\lambda_1 = \left(\frac{W_K}{W_+} \right)_1 = 0,037$
2. $\text{Zn}^{63} - \text{Cu}^{63}$ (0,96 MeV)	$\lambda_2 = \left(\frac{W_K}{W_+} \right)_2 = 0,21$
3. $\text{Zn}^{63} - \text{Cu}^{63}$ (1,89 MeV)	$\lambda_3 = \left(\frac{W_K}{W_+} \right)_3 = 3,8$
4. $\text{Zn}^{63} - \text{Cu}^{63}$ (2,60 MeV)	$\lambda_4 = \left(\frac{W_K}{W_+} \right)_4 = \infty$

VII. Termschema.

Die Energiedifferenz der Grundzustände der beiden Kerne Zn^{63} und Cu^{63} ist gleich der Maximalenergie der Positronen $\Delta M = (2,36 \pm 0,04) \text{ MeV} + mc^2$ (Differenz der Atommassen $= \Delta M - mc^2 = 3,38 \text{ MeV}$).

Durch Positronenemission und K -Einfang werden zwei Niveaux bei $E_{\text{I}} = (0,960 \pm 0,008) \text{ MeV}$ und $E_{\text{II}} = (1,89 \pm 0,06) \text{ MeV}$ angeregt. Die Anregungswahrscheinlichkeiten können aus den Intensitätsverhältnissen der γ -Linien unter Zuhilfenahme der theoretischen Werte für $\lambda = \frac{W_K}{W_+}$ berechnet werden. Es wird dabei vorausgesetzt, dass der Übergang vom 1,89 MeV-Niveau aus stets in den Grundzustand geht und also vom Kern keine γ -Quanten in Kaskade emittiert werden. ($\gamma - \gamma$)-Koinzidenzmessungen zeigen in der Tat ausser der simultanen Emission der zwei Quanten der Vernichtungsstrahlung keine Anzeichen einer Emission von γ -Quanten in Kaskade durch den Atomkern.

Das dritte Niveau bei $E_{\text{III}} = (2,60 \pm 0,08) \text{ MeV}$ kann aus Energiegründen nur durch K -Einfang angeregt werden. Trotz dem Auftreten harter Sekundär- γ -Strahlung (siehe Abschnitt IX) scheint uns die 2,6 MeV-Komponente als Kern- γ -Linie gedeutet werden zu müssen.

Als Verhältnis der Intensitäten hatten wir gefunden

$$J(\gamma_{0,51 \text{ MeV}}) : J(\gamma_{0,96 \text{ MeV}}) : J(\gamma_{1,9 \text{ MeV}}) : J(\gamma_{2,6 \text{ MeV}}) = 100 : 4,5 : 2 : 0,2.$$

Da auf die Emission eines Positrons zwei 0,51 MeV-Vernichtungs-

quanten fallen, erhält man auf die Totalzahl der emittierten Positronen bezogen:

$$J(\beta_1^+ + \beta_2^+ + \beta_3^+) : J(\gamma_{0,96 \text{ MeV}}) : J(\gamma_{1,9 \text{ MeV}}) : J(\gamma_{2,6 \text{ MeV}}) = 100 : 9 : 4 : 0,5.$$

Mit $N(\gamma) = N(\beta^+) + N(K) = N(\beta^+) \cdot (1 + \lambda)$ ergeben sich

Übergang		Intensität pro zerfallenden Zn^{63} -Kern	
1. $\text{Zn}^{63} - \text{Cu}^{63}$	Grundzustand	$N(\beta_1^+)$	0,85
		$N(K_1)$	0,03
2. $\text{Zn}^{63} - \text{Cu}^{63}$	0,960 MeV-Niveau	$N(\beta_2^+)$	0,07
		$N(K_2)$	0,01
3. $\text{Zn}^{63} - \text{Cu}^{63}$	1,89 MeV-Niveau	$N(\beta_3^+)$	0,01
		$N(K_3)$	0,03
4. $\text{Zn}^{63} - \text{Cu}^{63}$	2,60 MeV-Niveau	$N(K_4)$	0,005

$$N(\beta_1^+) : N(\beta_2^+) : N(\beta_3^+) = 100 : 8 : 1.$$

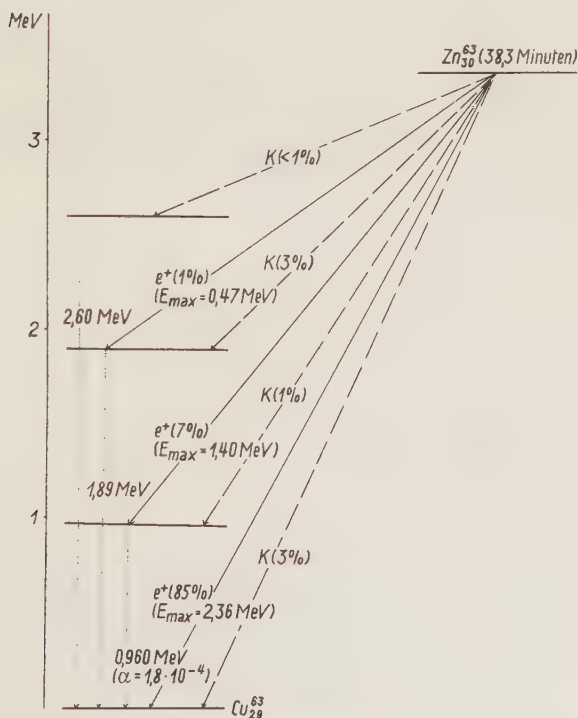


Fig. 11.

Termschema der $\text{Zn}^{63} - \text{Cu}^{63}$ -Umwandlung.

Die so aus den Intensitäten berechneten Anregungswahrscheinlichkeiten durch Positronenemission lassen sich vergleichen mit den aus der FERMI-Analyse des Positronenspektrums folgenden, für welche

$$N(\beta_1^+): N(\beta_2^+): N(\beta_3^+) = 100:10:5$$

gefunden worden war. Innerhalb der Fehlergrenzen sind die nach den beiden gänzlich verschiedenen Methoden bestimmten Wahrscheinlichkeiten der Positronenübergänge in den Grundzustand und in das 0,960 MeV-Niveau in Übereinstimmung. Dass die FERMI-Analyse des Spektrums für die Intensität des weichsten dritten Partialspektrums, und damit für die Anregungswahrscheinlichkeit des 1,89 MeV-Niveaus einen zu grossen Wert ergibt, war auf Grund des im Abschnitt V Gesagten zu erwarten.

VIII. Dosimetrie der Zn^{63} -Präparate.

Da das Umwandlungsschema des Radio-Zinks nun bekannt ist, kann auch die Absolutintensität von Zn^{63} -Präparaten bestimmt werden. Zweckmässig ist es, eine Absolutmessung der Intensität der γ -Strahlung vorzunehmen. Wird die γ -Intensität mit einem Messingzählrohr (Wandstärke 1 mm, Füllung 100 Tor Argon, 10 Tor Alkohol) gemessen, so bestimmt sich die absolute Präparatstärke aus der gemessenen Stosszahl Z (sec^{-1}) zu

$$S(\text{Zn}^{63}) = \frac{Z(\text{Zn}^{63})}{\alpha \sum_K \varepsilon_K N_K e^{-(\mu_{\text{Pb}} \cdot 1 + \mu_{\text{Cu}} \cdot 0,14)}} = \frac{Z(\text{Zn}^{63})}{\alpha \cdot 1,08 \cdot 10^{-3}}.$$

S = Anzahl der pro Sekunde zerfallenden Zn^{63} -Kerne

s = Intensität in Millicurie = $\frac{S}{3,72 \cdot 10^7}$

α = Raumwinkel

ε_K = Zählrohrsensibilität

μ_K = Absorptionskoeffizient.

Das Präparat ist dabei allseitig mit einem 1 cm dicken Bleiabsorber umgeben.

Für die Auswertung der Summe, die sich über die Beiträge der vier Komponenten der γ -Strahlung erstreckt, wurden die Intensitäten N_k , die im vorangehenden Abschnitt angegeben sind, und für die zugehörigen Zählrohrsensibilitäten die Werte nach⁶⁾ zugrunde gelegt.

Will man die Absolutintensität durch eine Vergleichsmessung mit einer Standard- γ -Strahlenquelle bestimmen, so hat man für diese

die entsprechende Summe der Intensitäten der einzelnen Komponenten zu ermitteln. So ist für eine Vergleichsquelle Ra ($B + C$) $\sum_K \varepsilon_K N_K e^{-(\mu_{\text{Pb}} \cdot 1 - \mu_{\text{Cu}}^{0,14})} = 3,9 \cdot 10^{-3}$ für 1 cm Bleifilterung. Für die Intensitäten N_k des Radiums sind die Werte von ELLIS und ASTON¹⁰⁾ (vgl. G. J. SIZOO, H. WILLEMSSEN¹¹⁾) eingesetzt worden.

Experimentell ergab sich für ein Radiumpräparat der Stärke 1,08 Millicurie die Stosszahl 130 pro Sekunde und daraus mit dem Raumwinkel $\alpha = 0,75 \cdot 10^{-3}$ $\Sigma = 4,3 \cdot 10^{-3}$. Eine bessere Übereinstimmung mit dem berechneten Wert ist in Anbetracht der Unsicherheit der N_k -Werte und der nicht vollkommenen Ausblendung des Strahlenbündels nicht zu erwarten.

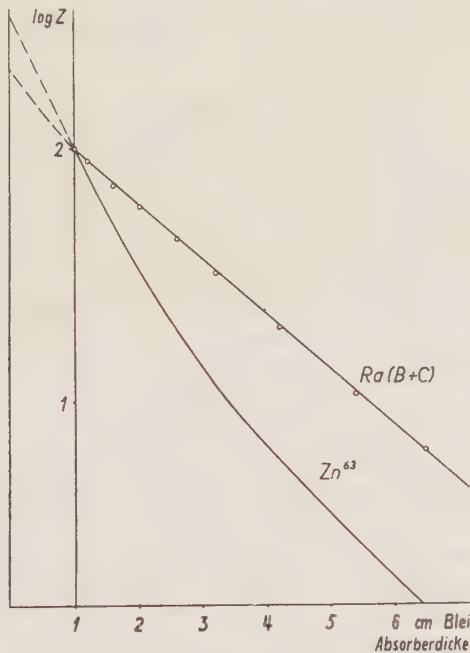


Fig. 12.

Absorption der γ -Strahlung von Zn^{63} und Radium in Blei. (Messingzählrohr.)

Durch Vergleich der Zählrohrstosszahlen der beiden γ -Quellen ergibt sich für die Zn^{63} -Präparatstärke

$$S(\text{Zn}^{63}) = \frac{Z(\text{Zn}^{63})}{Z(\text{Ra})} \cdot \frac{\Sigma(\text{Ra})}{\Sigma(\text{Zn}^{63})} = f(x) \frac{Z(\text{Zn}^{63})}{Z(\text{Ra})}.$$

Die Genauigkeit ist durch die angeführten Unsicherheitsfaktoren beschränkt und nicht höher als 20% zu bewerten. Der Vergleichs-

faktor $f(x)$ wurde für grössere Bleifilterdicken x aus den bei gleicher geometrischer Anordnung (siehe Fig. 4) experimentell bestimmten Absorptionskurven der Radium- und der $\text{Zn}^{63}\text{-}\gamma$ -Strahlung (Fig. 12) ermittelt. Der Intensitätsvergleich liefert unter Berücksichtigung des Wertes $f(1 \text{ cm}) = 3,6$ die $f(x)$ -Werte bei grösserer Filterdicke (siehe Fig. 13).

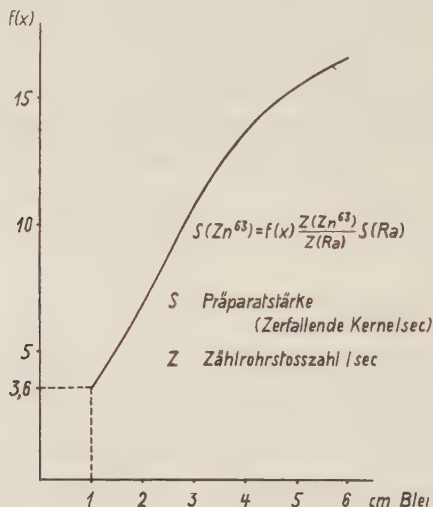


Fig. 13.

Vergleich der Zählrohrstosszahlen von Zn^{63} - und Radium-Präparaten.
(Messingzählrohre.)

IX. Sekundär- γ -Strahlung des Zn^{63} .

Bei der Zerlegung der Absorptionskurve der $\text{Zn}^{63}\text{-}\gamma$ -Strahlung in die Komponenten der drei intensivsten γ -Linien hatten wir die Annahme gemacht, dass der gesamte Intensitätsanteil den Kern- γ -Linien zuzuschreiben sei. Wie die im folgenden beschriebenen Experimente zeigen, liegt der Intensitätsanteil energiereicher Sekundärstrahlung innerhalb der Fehlergrenzen, die durch die Zerlegung in Komponenten auftreten.

Für die Erzeugung von Sekundär γ -Strahlung neben den Comptonkomponenten fallen zwei Prozesse in Betracht. Erstens wird bei der „inneren“ und „äusseren“ Bremsung der Positronen im Coulombfeld des Zerfallkernes beziehungsweise im Absorber ein kontinuierliches γ -Spektrum emittiert. Zweitens lässt die DIRAC'sche Theorie des Elektrons erwarten, dass bei der Annihilation der Positronen ausser der 0,51 MeV γ -Strahlung eine schwächere, härtere γ -Strahlung mit kontinuierlicher Spektralverteilung auftritt. Diese

sollte bei der Annihilation bewegter, noch nicht abgebremster Positronen entstehen und zum Teil als Einquantenstrahlung mit der Energie grösser als $2mc^2$ — der gesamten Ruhmasse des Positron-Elektron-Paares zuzüglich der kinetischen Energie des Positrons — emittiert werden. Die Bremsstrahlung von β -Strahlern ist zuerst von ASTON¹²⁾ beim RaE nachgewiesen worden und auch bei anderen β -Strahlern von STAHEL und KIPFER¹³⁾, WU¹³⁾ u. a. untersucht worden. Die harte Annihilationsstrahlung ist dagegen direkt noch nicht beobachtet worden.

Bei Positronenstrahlern wird der Nachweis einer wenig intensiven Sekundärstrahlung durch den starken Untergrund der 0,51 MeV Annihilationsstrahlung erschwert. Es schien uns trotzdem möglich, zum mindesten den härteren Teil des Sekundärspektrums zu messen.

Absorptionsmessungen der Zn^{63} - γ -Strahlung in Blei ergaben keinen eindeutigen Unterschied der Absorptionskurven, wenn die Absorption der Positronen in Al, bzw. in Pb stattfand. Im letzteren Falle sollte die Sekundärstrahlung verstärkt auftreten. Dagegen konnte eine harte Sekundärstrahlung beim Zn^{63} durch Ausmessen der Comptonelektronen mit der БОТНЕ'schen Koinzidenzanordnung beobachtet werden. Die Messanordnung war die folgende: Das Zn^{63} -Präparat befindet sich in einer dünnen Zellophanhülle eingeschlossen in fest fixierter Lage zwischen den zwei Absorbern *a* (siehe Fig. 14). Diese bestehen aus 5 mm dicken Aluminiumplatten, auf denen einseitig 1,5 mm dicke Bleifolien aufgeschraubt sind. Die Absorber können gedreht werden, so dass die Annihilation der Positronen abwechselungsweise in Aluminium oder Blei stattfindet. Eine zusätzliche 3 cm dicke Bleiplatte schwächt die 0,51 MeV- γ -Strahlung um einen Faktor 200. Zuerst wurde mit dieser Anordnung die Absorption der Comptonelektronen gemessen. Die Aluminiumseiten der Absorber *a* waren dem Präparat zugekehrt. Kurve Ia der Fig. 14 zeigt die Zahl der Koinzidenzen in Funktion der Dicke *d* der zwischen die Zählrohre eingeschobenen Aluminiumabsorber. Die Kurve lässt sich zerlegen in die Anteile der Comptonelektronen der vier γ -Linien; 60% der bei *d* = 0 cm registrierten Koinzidenzen rühren von der 1,89 MeV γ -Linie her.

Nun wurde untersucht, ob sich ein Unterschied in der Koinzidenzzahl feststellen lässt; je nachdem die Annihilation der Positronen in Aluminium oder in Blei erfolgt. Mit den Aluminiumabsorbern *d* = 0,5 mm spricht die Messanordnung nur auf Comptonelektronen einer γ -Strahlung, die energiereicher als 0,8 MeV ist, mit *d* = 0,8 mm nur auf solche über 1 MeV an. Die Differenzmessungen ergaben eine

Erhöhung der Koinzidenzzahlen bei allen Al-Absorbern der Dicke $d = 0$ mm bis $d = 0,8$ mm um 5 bis 2,5%, wenn die Pb-Seiten der Absorber a dem Präparat zugewandt waren. (Fig. 14, Kurve IIa). Sie zeigen also eindeutig eine Sekundär- γ -Strahlung an.

Um zu entscheiden, ob der beobachtete Effekt der äusseren Bremsstrahlung oder der harten Annihilationsstrahlung zuzuschreiben ist, haben wir die beobachteten Differenzkurven mit den für

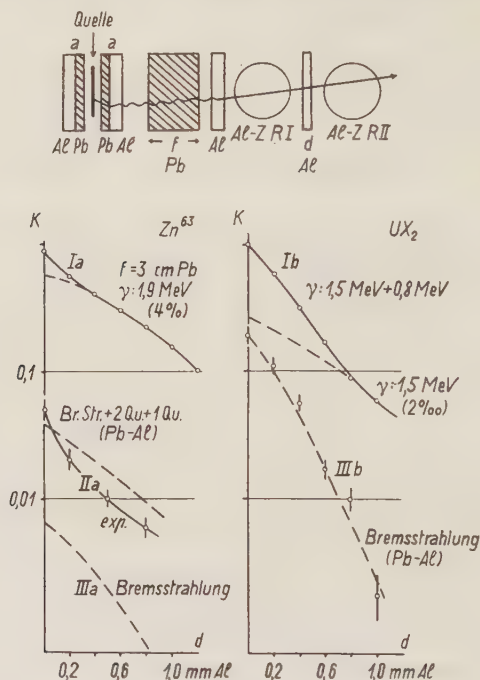


Fig. 14.

Absorption der Comptonelektronen der γ -Strahlung des Zn^{63} und UX_2 .

beide angeführten Prozesse berechneten verglichen. Die Intensität und spektrale Verteilung der Bremsstrahlung wurde nach den Formeln von HEITLER¹⁵⁾ berechnet unter Annahme einheitlicher Energieverluste der Positronen im Absorber. Pro Zn^{63} -Positronenzerfall sind 0,03 Bremsquanten mit Energien über 1 mc² zu erwarten (Fig. 15, Kurve IIa). Der Berechnung der Spektren der harten Ein- und Zweiquantenannihilationsstrahlung wurden die von BETHE¹⁶⁾ berechneten Wirkungsquerschnitte zugrunde gelegt.

Vergleichsweise wurde das Bremsspektrum auch für den β -Strahler UX_2 berechnet, dessen Maximalenergie und spektrale

Verteilung bei hohen Energien nur wenig verschieden sind von denjenigen des Positronenstrahlers Zn^{63} .

Aus den berechneten Sekundär- γ -Spektren lässt sich die Differenz der Absorptionskurven der Comptonelektronen bei Absorption der Positronen in Blei beziehungsweise in Aluminium ableiten, da der Verlauf der Absorptionskurve von Comptonelektronen für monochromatische γ -Strahlung verschiedener Energie aus Eichmessungen und auch die relative Sensibilität der Anordnung bekannt ist. (Siehe z. B. BLEULER und ZÜNTI¹⁷).

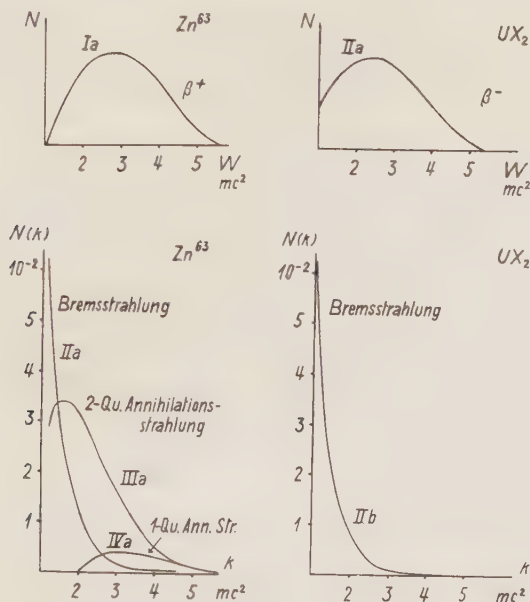


Fig. 15.

Sekundär- γ -Strahlung des Zn^{63} und UX_2 .

Im Falle des UX_2 stimmt der Verlauf der berechneten Absorptionskurve (Fig. 14, Kurve IIIb) gut mit dem gemessenen überein. Bei der Absorberdicke $d = 0$ mm wurde die berechnete Kurve an die gemessene angeschlossen, da der Raumwinkel der Anordnung unbekannt ist. Der selbe geometrische Faktor wurde benützt, um beim Zn^{63} die berechneten Differenzkurven an die bekannte Intensität der Kern- γ -Strahlung anzuschliessen. Wird bei der Zn^{63} - γ -Strahlung nur das Bremspektrum berücksichtigt, so liegt die theoretische Kurve (Fig. 14, IIIa) wesentlich unter der experimentell bestimmten. Man erhält dagegen gute Übereinstimmung, wenn man die Spektren der harten Annihilationsstrahlungen mitberücksichtigt.

Mit einem lichtstarken Spektrographen sollte es möglich sein, die Sekundärelektronen der harten Annihilationsstrahlung direkt auszumessen und den Effekt quantitativer, als es hier geschehen ist, zu untersuchen.

Herrn Prof. Dr. P. SCHERRER sprechen wir unseren besten Dank aus für sein Interesse an dieser Arbeit.

Zürich, Physikalisches Institut der E. T. H.

Literaturverzeichnis.

- 1) C. V. STRAIN, Phys. Rev. **54**, 1021 (1938).
 - 2) L. A. DELSASSO, L. N. RIDENOUR, R. SHERR, M. G. WHITE, Phys. Rev. **55**, 113 (1939).
 - 3) Siehe z. B. MATTAUCH, FLÜGGE, Kernphysikal. Tabellen, Springer 1942.
 - 4) A. A. TOWNSEND, Proc. Roy. Soc. London A. **177**, 357 (1941).
 - 5) S. C. CURRAN, P. J. DEE, V. PETRZILKA, Proc. Roy. Soc. **169**, 269 (1936).
 - 6) H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER, Helv. Phys. Acta **19**, 77 (1946).
 - 7) S. M. DANCOFF, P. MORRISON, Phys. Rev. **55**, 122 (1929).
 - 8) M. H. HEBB, E. NELSON, Phys. Rev. **58**, 496 (1940).
 - 9) C. MÖLLER, Phys. ZS. d. Sowjetunion **11**, 9 (1937).
 - 10) C. D. ELLIS, G. H. ASTON, Proc. Roy. Soc. London A **129**, 180 (1930).
 - 11) G. J. SIZOO, H. WILLEMSSEN, Physica **5**, 100 (1938).
 - 12) G. H. ASTON, Proc. Camb. Phil. Soc. **23**, 935 (1927).
 - 13) E. STAHEL, P. KIPFER, Helv. Phys. Acta **9**, 492 (1936).
 - 14) C. H. WU, Phys. Rev. **59**, 481 (1941).
 - 15) W. HEITLER, The Quantum Theory of Radiation, Oxford 1944, siehe S. 165, 170, 219.
 - 16) H. A. BETHE, Proc. Roy. Soc. **150**, 129 (1935).
 - 17) E. BLEULER, W. ZÜNTI, Helv. Phys. Acta **19**, 375 (1946).
-

Resonanzen beim Prozess $S^{32}(n, p)P^{32}$

von E. Bleuler.

(27. VIII. 1947.)

Zusammenfassung. Die Abhängigkeit des Wirkungsquerschnittes der Reaktion $S^{32}(n, p)P^{32}$ von der Neutronenenergie wird mit monochromatischen D-D-Neutronen zwischen 2 und 3,7 MeV untersucht. Resonanzen werden bei $E_n = 2,39, 2,80, 3,10, 3,46$ und $3,65-3,7$ MeV festgestellt.

A. Einleitung.

Bei der Bestrahlung von SO_2 mit dem kontinuierlichen Spektrum der Rn-Be-Neutronen in der Ionisationskammer beobachtete WILHELMY¹⁾ — ähnlich wie bei Stickstoff und Sauerstoff — das bevorzugte Auftreten von Protonen und α -Teilchen bestimmter Energien. Im Prozess $S^{32}(n, \alpha)Si^{29}$ werden die beobachteten α -Gruppen von 2,8 und 4,15 MeV durch Neutronen von 1,6 und 2,95 MeV erzeugt ($Q = 1,2$ MeV). Bei den Protonengruppen von 1,4, 1,82 und 2,25 MeV der Reaktion $S^{32}(n, p)P^{32}$ betragen die entsprechenden Energien der einfallenden Neutronen 2,36, 2,78 und 3,21 MeV ($Q = -0,96$ MeV).

Die Resonanzmaxima des Wirkungsquerschnittes kommen dadurch zustande, dass für diese Neutronenenergien E_n die Anregungsenergie des Zwischenkerns $S^{33} E^* = E_0 + {}^{32}_{33} E_n$ mit einem seiner Energieniveaus zusammenfällt. (E_0 — Bindungsenergie des Neutrons in S^{33} .) Das Auftreten der Resonanzen ist daher nur dann zu erwarten, wenn die Breite der Niveaus kleiner ist als ihr Abstand, d. h. bei leichten Kernen und nicht zu hoher Anregungsenergie.

Die obige Deutung der beobachteten Gruppen beruht aber auf der Annahme, dass die Kernreaktion in den Grundzustand des Folgekernes führt, was nicht immer der Fall zu sein braucht. Zur Entscheidung muss der Wirkungsquerschnitt mit monochromatischen Neutronen gemessen werden. Dies wurde hier für die Reaktion $S^{32}(n, p)P^{32}$ durchgeführt, welche durch Nachweis des entstehenden radioaktiven P^{32} leicht untersucht werden kann. Eine ähnliche Kontrolle ist bisher nur von BARSCHALL und BATTAT²⁾ bei Stickstoff mit Energien bis zu 1,7 MeV gemacht worden.

Messmethode.

Als Quelle monochromatischer Neutronen variabler Energie wurde die Reaktion $\text{H}^2(d, n)\text{He}^3$ benutzt. Bei einer mittleren Beschleunigungsspannung von 0,62 MeV und einer Energietönung von 3,31 MeV beträgt die Energie der Neutronen unter einem Winkel ϑ gegenüber der Einfallsrichtung der Deutonen

$$E_n = [0,278 \cos \vartheta + (2,633 + 0,078 \cos^2)^{1/2}]^2$$

so dass sie zwischen 3,71 MeV ($\vartheta = 0$) und 1,88 MeV ($\vartheta = 180^\circ$) verändert werden kann.

Die Deuteronen wurden mit dem Tensator beschleunigt, magnetisch abgelenkt und trafen auf eine D_2O -Schicht von ca. 80 keV Bremsvermögen. Letztere wurde durch Aufdampfen bestimmter Mengen D_2O auf eine mit flüssiger Luft gekühlte Kupferplatte hergestellt. Ihre Dicke wurde durch Messung der Neutronenintensität

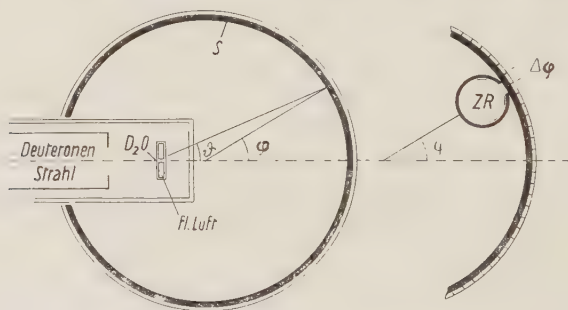


Fig. 1.

Anordnung für Bestrahlung und Aktivitätsmessung.

relativ zur Sättigungsintensität (bei dicker Schicht) bestimmt. Eine Untersuchung des Neutronenspektrums mit Hilfe der photographischen Methode zeigte die erwartete Halbwertsbreite von etwa 0,1 MeV in der Vorwärtsrichtung.

Die Anordnung zur Bestrahlung des Schwefels zeigt Fig. 1. Ein Schwefelring von 40 mm Breite, 3 mm Dicke und 149 mm innerem Durchmesser ist in einen Resocylinder eingegossen. Da die Neutronenintensität für $\vartheta = 0$ am grössten ist, wird er exzentrisch befestigt. Nach einer Bestrahlung mit $160 \mu\text{Ah}$ wurde die Verteilung der Aktivität des P^{32} auf dem Ring gemessen, indem er mit einem Zählrohr abgetastet wurde. Die Spaltbreite betrug 6 mm; die Messpunkte waren 5,8 mm voneinander entfernt, entsprechend einer Drehung des Ringes um $\Delta\varphi = 4,5^\circ$.

Resultat.

Das Ergebnis der Aktivitätsmessung zeigt Fig. 2. Das hervorstechende Merkmal sind die Maxima bei $\varphi = 49,5^\circ, 76,5^\circ, 99^\circ$ und 126° . Die Tatsache, dass sie auf beiden Seiten auftreten, zeigt, dass es sich nicht um Nebeneffekte handelt (z. B. ungleichmässige Schwefelschicht).

Der Wirkungsquerschnitt $\vartheta_{n,p}$ ist in Fig. 3 als Funktion der Neutronenenergie dargestellt. Dabei wurde für die Verteilung der

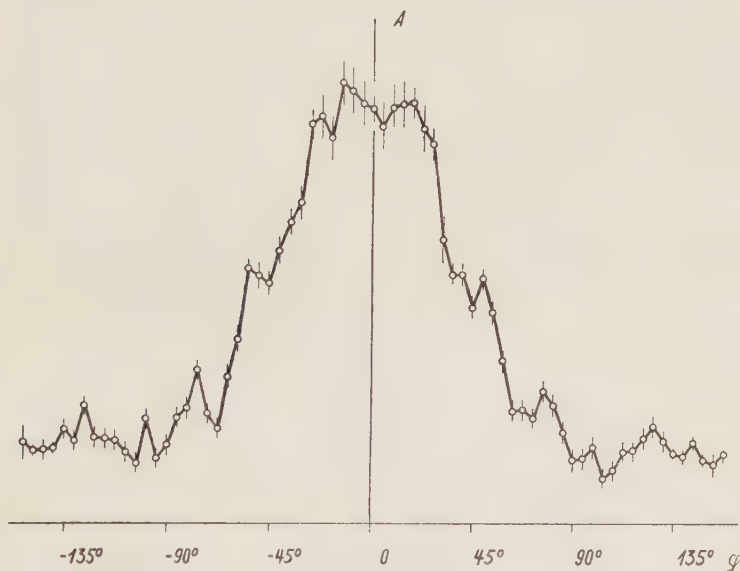


Fig. 2.

Verlauf der Aktivität des P^{32} auf dem Kreisumfang (willkürliche Einheiten).

D-D-Neutronen im Schwerpunktsystem das Gesetz $n(\Theta) = \text{const.} (1 + A \cos^2 \Theta)$ angenommen, mit dem Wert $A = 2,0$ (nach BENNETT, MANDEVILLE und RICHARDS³⁾). Kleine Verschiebungen der mittleren Neutronenenergie infolge der Mittelung über die Fläche des Messpaltes wurden berücksichtigt. Die Auflösungskurven sind für einige Energien angegeben. Ihre Form hängt von der geometrischen Anordnung, der Ausdehnung der Quelle und der Dicke der D_2O -Schicht ab und ändert sich mit der Neutronenenergie.

Diskussion.

Der Wirkungsquerschnitt für den (n, p) -Prozess lässt sich schreiben:

$$\sigma_{n,p} = \sigma_z \frac{\Gamma_p}{\Gamma}.$$

σ_z ist der Wirkungsquerschnitt für die Bildung des Zwischenkerns, Γ_p/Γ die relative Wahrscheinlichkeit der Aussendung eines

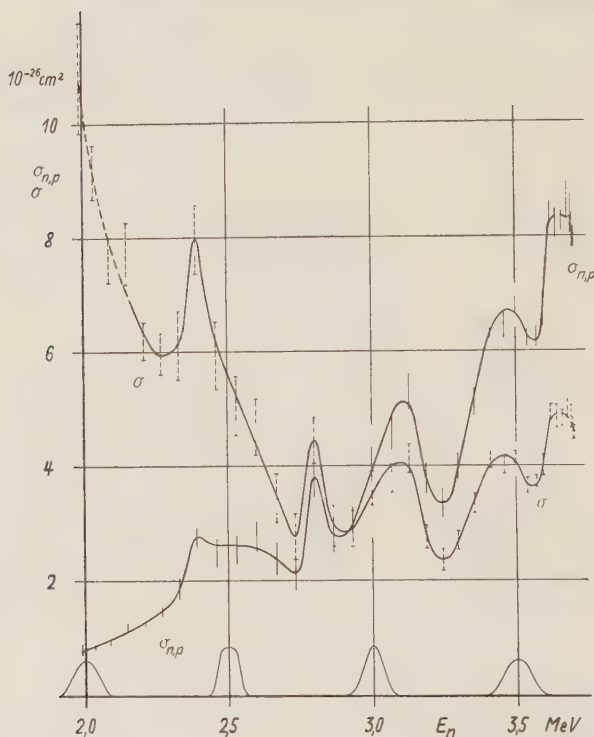


Fig. 3.

Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte.

- $\sigma_{n,p}$ Die Absolutwerte können 50% fehlerhaft sein.
- - $\sigma' = \sigma_{n,p} E^2/P_0$ in willkürlichen Einheiten.

Protons, gegeben durch das Verhältnis der Protonenbreite zur Gesamtbreite des fraglichen Zustandes des Zwischenkernes. Die letztere ist wegen der Behinderung der Emission geladener Teilchen durch das Coulombfeld im wesentlichen durch die Neutronenbreite gegeben. Um σ_n , das die gesuchten Resonanzen aufweist, zu berechnen, müsste man Γ_p und Γ_n kennen. Diese werden jedoch auch

von den individuellen Niveaus abhängen. Das beste, was man tun kann, ist daher, wenigstens die allgemeine Energieabhängigkeit dieser Grössen zu eliminieren. Γ_p wurde der Einfachheit halber proportional zur Durchdringbarkeit der Coulomb-Barriere für ein Teilchen mit dem Bahndrehimpuls 0 gesetzt (P_0 , berechnet nach WEISSKOPF und EWING⁴), mit einer Potentialschwelle von 4,63 MeV). Für Γ_n wurde Proportionalität mit E^2 angenommen, weil mit wachsender Energie einerseits die Zahl der Niveaus zunimmt, in welchen beim Prozess $S^{32}(n, n)S^{32*}$ der Endkern zurückbleiben kann, andererseits aber auch die Wahrscheinlichkeit für den Zerfall in jedes bestimmte Niveau S^{32*} mit der Energie ansteigt.

Der so berechnete Wirkungsquerschnitt $\sigma' = \sigma_{n, p} E^2 / P_0$ in willkürlichen Einheiten, ist ebenfalls in Fig. 3 eingezeichnet. Er sollte nur noch die von den einzelnen Niveaus abhängigen Schwankungen enthalten. Der Anstieg bei kleinen Energien dürfte zum Teil auf Streuneutronen, zum Teil auf die mangelhafte Berechnung von P_0 (die verwendete Näherung ist für $Z = 15$ nicht mehr sehr gut) zurückzuführen sein.

Tabelle 1 gibt die Resonanzenergien nach Fig. 3 und nach WILHELMY, sowie die Anregungsenergien des Zwischenkernes S^{33} , wobei für das letzte Neutron eine Bindungsenergie von 9,02 MeV angenommen worden ist (Isotopenbericht 1942⁵).

Tabelle 1.

E_{\max} Fig. 3	$E^*(S^{33})$ ($E_0 = 9,02$ MeV)	E_{\max} WILHELMY
2,39 MeV	11,34 MeV	2,36 MeV
2,80	11,73	2,78
3,10	12,03	3,21
3,46	12,37	
3,65–3,7	12,56–12,61	

Es zeigt sich, dass die drei tiefsten Maxima sehr gut mit denjenigen WILHELMYS übereinstimmen, während er die höheren aus Intensitätsgründen nicht mehr erhalten konnte. Ob sein für α -Teilchen gefundenes Maximum bei $E_n = 2,95$ MeV nicht mit einem der Protonenmaxima zusammenfällt, kann in Anbetracht der Unsicherheit der Messung und der Energietönung des (n, α) -Prozesses nicht mit Sicherheit entschieden werden. Die Genauigkeit der Werte der ersten Kolonne beträgt etwa 0,05 MeV, wobei der Fehler zum grossen Teil von der Unsicherheit des Q -Wertes der D-D-Reaktion stammt, welche 0,03 MeV beträgt. Die Lage des obersten

Maximums kann nicht genau angegeben werden, da seine Flanke zu höheren Energien nicht weiter verfolgt werden kann.

Die Breiten der beiden tiefsten Maxima der Kurve σ' scheinen kleiner als das Auflösungsvermögen der Messung (~ 80 keV), während die Niveaus bei 3,1 und 3,46 MeV rund 200 keV breit sein dürften, ohne dass allerdings eine Multiplettstruktur ausgeschlossen werden kann. BARSCHALL und BATTAT²⁾ finden für den Prozess $N^{14}(n, p) C^{14}$ Niveaubreiten von 50—100 keV.

Eine Bemerkung zur Deutung der Maxima mag noch am Platze sein: Es scheint zunächst erstaunlich, dass bei diesen Anregungsenergien von rund 12 MeV der Abstand der Niveaus immer noch 200—400 keV betragen soll, während für die Reaktion $Al^{27}(p, \gamma) Si^{28}$ zwischen 12 und 13 MeV Anregungsenergie des Si^{28*} ein mittlerer Niveaubestand von 30 keV gemessen wird (BROSTRÖM, HUUS und TANGEN⁶⁾). Man sieht jedoch sofort ein, dass der Unterschied nur eine Sache des Auflösungsvermögens oder der Niveaubreite ist. Denkt man sich nämlich die Anregungskurve dieser Autoren mit einem Auflösungsvermögen von 80 keV gemessen, oder die Niveaus — z. B. durch die Möglichkeit der Neutronenemission — auf diesen Betrag verbreitert, so erhält man nur noch wenige ausgeprägte Maxima an den Stellen der stärksten Resonanzen, mit Abständen von 250—350 keV.

Bei der Untersuchung dieser Neutronenresonanzen scheint man also nur die Lage einiger weniger bevorzugter Niveaus zu messen. Es wird auf alle Fälle interessant sein, zu untersuchen, ob diese für die (n, p) und die (n, α) -Prozesse dieselben sind. Die Verwendung monochromatischer Neutronen hat hier grosse Vorteile gegenüber der Methode von WILHELMY, da die Unterscheidung der Reaktionen viel leichter ist.

Dem Leiter des Institutes, Herrn Prof. Dr. P. SCHERRER, bin ich für die fördernde Unterstützung dieser Arbeit zu grossem Dank verpflichtet.

Zürich, Physikalisches Institut der E. T. H.

Literaturverzeichnis.

- 1) WILHELMY, Zs. f. Physik **107**, 769 (1937).
- 2) BARSCHALL und BATTAT, Phys. Rev. **70**, 245 (1946).
- 3) BENNETT, MANDEVILLE und RICHARDS, Phys. Rev. **69**, 418 (1946).
- 4) WEISSKOPF und EWING, Phys. Rev. **57**, 472 (1940).
- 5) FLÜGGE und MATTAUCH, Phys. Z. **44**, 181 (1943).
- 6) BROSTRÖM, HUUS und TANGEN, Phys. Rev. **71**, 661 (1947).

Über eine neue Zählrohr-Entladung bei stark ionisierenden Strahlen

von P. Huber, W. Hunzinger und E. Baldinger, Basel.

(25. IX. 1947.)

Im Zählrohr sind heute zwei verschiedene Entladungsarten bekannt:

1. Entladung im Proportionalbereich,
2. Entladung im GEIGER-Bereich.

Im Proportionalbereich wird die primär gebildete Ionenzahl durch Stossionisation um einen konstanten Faktor verstärkt und die gebildete Ladung ist ein Mass für die Ionisation des einfallenden Teilchens. Im GEIGER-Bereich entsteht ein Ionenschlauch, dessen Ladung nur vom Zählrohr und seinen Betriebsdaten bestimmt wird.

Eine dritte Entladungsart wird nun gebildet, wenn stark ionisierende Teilchen das Zählrohr radial durchlaufen. Den Ausgangspunkt zur Feststellung dieses Entladungstypus bildete die Beobach-

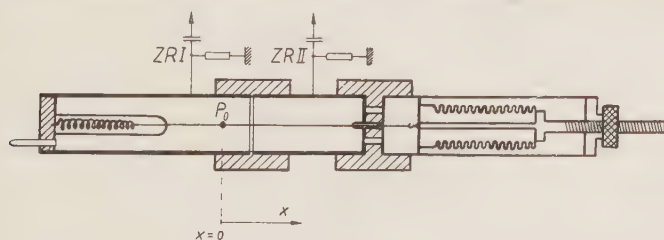


Fig. 1.

Zählrohr mit axial verschiebbarer α -Quelle.

tung von übergrossen Impulsen bei der Bestrahlung eines Zählrohrs mit α -Teilchen. Zur quantitativen Untersuchung benützten wir die in Fig. 1 wiedergegebene Anordnung. Die möglichst punktförmig auf den Draht gebrachte Po-Quelle wird längs des Zählrohres verschoben und an den von einander isolierten Kathoden werden die Impulse abgenommen. Die Ergebnisse sind in Fig. 2 dargestellt.

Wir danken Madame I. Joliot-Curie für die uns zur Verfügung gestellte Po-Quelle.

Der rasche Abfall der Zahl der grossen Impulse im Zählrohrteil I bei Übergang der α -Quelle in den andern Abschnitt II zeigt, dass grosse Impulse von α -Teilchen nur dann ausgelöst werden, wenn der Winkel zwischen Bahn und Zählrohrdraht grösser als $\pi/2 - \varphi_0$ ist. Für das hier aufgeführte Beispiel ist $\varphi_0 = 0,20$. Wir besitzen damit in dieser Entladungsart ein Zählrohr mit grosser Richtungsempfindlichkeit für stark ionisierende Teilchen. Mit steigender Zählrohrspannung wächst φ_0 und damit die Zahl der grossen Impulse. Die experimentell bestimmte Zunahme der Impulszahl lässt sich

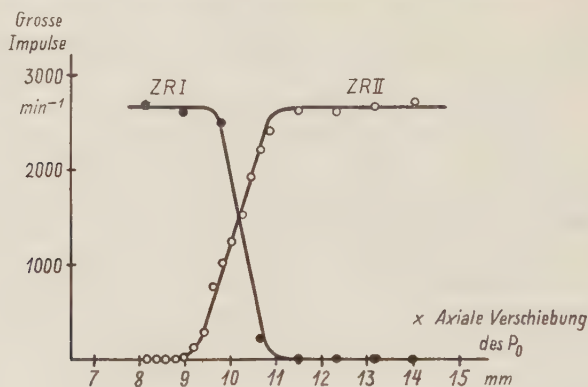


Fig. 2.

Die Zahl der grossen Impulse in Abhängigkeit vom Ort der α -Quelle nach Fig. 1. ZR I und ZR II sind die Messkurven der entsprechenden Zählrohrabschnitte.

aus dem Anstieg von φ_0 berechnen und stimmt mit den Messungen quantitativ überein.

Die Ladung der grossen Impulse wurde für die vorliegende Anordnung bestimmt. Als Vergleichsladung sei die pro cm Ionenschlauch gebildete Ladung angeführt, die sich unter den gleichen Betriebsbedingungen des Zählrohres einstellt. Für ein Zählrohr: Füllung $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ 3 cmHg, Argon 5 cmHg; Dimensionen $r_a = 9$ mm, $r_i = 1/10$ mm, Betriebsspannung 1400 Volt ergeben sich folgende Ladungen:

Ionenschlauch/cm: $3,4 \cdot 10^{-10}$ Clb/cm

Grosse α -Impulse: $20 \cdot 10^{-10}$ Clb.

Durch Wahl anderer Betriebsdaten und Abnahme der Impulse an einer isolierten Kathode von nur einigen Millimetern Länge ist es möglich, ein Verhältnis der Ladungen von über 50 zu erhalten.

Zur Erklärung der grossen Impulse betrachten wir ein stark ionisierendes Teilchen, welches das Zählrohr radial durchsetzt und längs

seiner Bahn Elektronen auslöst. Diese bewegen sich unter Einwirkung des Feldes gegen den Draht und beginnen bei einer bestimmten Feldstärke Stossionisation zu machen. Da alle Elektronen innerhalb eines kritischen Radius gleichzeitig mit Stossionisation beginnen, so kompensieren sich die entstehenden positiven und negativen Raumladungen. Die Stossionisation ist daher unbehindert bis zur Drahtoberfläche möglich. Im Gegensatz dazu steht die Ionisation, herrührend von einem einzelnen Primärelektron im GEIGER-Bereich. Hier können die Elektronen infolge der Raumladung der positiven Ionen wesentlich weniger ionisieren.

Die hier neubeschriebene Entladungsart entspricht Verhältnissen, wie sie in einer Gasentladung vorkommen, wo ebenfalls die Raumladungen kompensiert werden. Für die grossen Impulse lässt sich die Ladung in erster Näherung leicht abschätzen, da keine abschirmende Wirkung zu berücksichtigen ist. Die gemessene und so berechnete Ladung stimmen befriedigend überein.

Auch die Tatsache, dass die grossen Impulse nur in einem engen Winkelbereich entstehen, findet ihre Erklärung. Bildet die Bahn des ionisierenden Teilchens einen kleineren Winkel als $\pi/2 - \varphi_0$ mit dem Zählrohrdraht, so laufen die Elektronenlawinen zu weit an den vorausgebildeten positiven Ionenwolken vorbei, so dass die Kompensation der Raumladung ungenügend wird. Mit wachsender Zählrohrspannung werden die Ionen- und Elektronenlawinen ausgedehnter und sie können sich über weitere Gebiete neutralisieren. φ_0 wächst dabei mit steigender Spannung am Zählrohr. Aus solchen Messungen wird es möglich sein, über die räumliche Ausdehnung der Ladungswolken Aussagen zu machen.

Wir führen die Untersuchungen weiter und werden in einer späteren Arbeit die Ergebnisse ausführlicher darlegen.

HELVETICA PHYSICA ACTA

VOLUMEN XX

AUTORENREGISTER — TABLE DES AUTEURS

	Seite
ALDER, F., Baldinger, E., Huber, P. und Metzger, F. (Basel): Über die Ausbildung der Entladung in Zählrohren mit Alkoholdampfzusatz	73
ALDER, F., Huber, P. und Metzger, F. (Basel): Die Bestimmung der Ionisierungsarbeit an Stickstoff und Luft mit Po- α -Teilchen	234
ALDER, F.: s. Metzger, Huber und Alder	236
ATTINGER, CL. (Neuchâtel): Influence du fluide entraîné sur la période d'un pendule de torsion	253
BACHER, J. und Miescher, E. (Basel): Komplexspektren der Manganhalogenide	245
BALDINGER, E.: s. Alder, Baldinger, Huber und Metzger	73
BALDINGER, E. und Huber, P. (Basel): Über das Auflösungsvermögen selbstlöschender Zählrohre bei hohen Stosszahlen	238 und 470
BALDINGER, E.: s. Huber, Hunzinger und Baldinger	525
BERICHT über die Tagung der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft 229/455	
BLATTNER, H., Matthias, B. und Merz, W.: Einkristalle von Barium-Titanverbindungen	225
BLATTNER, H., Matthias, B., Merz, W. und Scherrer, P. (ETH. Zürich): Dielektrische Anomalien an Barium-Titanat-Einkristallen	245
BLEULER, E. und Gabriel, M.: Dualer Zerfall des Kalium 40	67
BLEULER, E., Scherrer, P., Walter, M. und Zünti, W.: β -Zerfall von N ¹⁶ . .	96
BLEULER, E. und Zünti, W.: Die Zerfallsenergien von O ¹⁹ , Na ²⁵ , Mg ^{c7} , Al ²⁸ und K ⁴²	195
BLEULER, E. et Rossel, J.: Etude de la réaction F ¹⁹ (n, α) N ¹⁶	445
BLEULER, E.: Resonanzen beim Prozess S ³² (n, p) P ³²	519
BORGNIS, F.: Zur Theorie der Elektronen-Plasmaschwingungen	207
BORSELLINO, A.: Über die Materialisierung der γ -Strahlen im Felde eines Elektrons.	136
BRADT, H., Gugelot, P. C., Huber, O., Medicus, H., Preiswerk, P., Scherrer, P. und Steffen, R.: Die metastabilen Zustände der Silberkerne Ag ¹⁰⁷ und Ag ¹⁰⁹	153
BRAUN, A. und Busch, G.: Versuche zur Messung der thermischen Elektronenemission von Graphit, Silizium und Siliziumcarbid	33
BUSCH, G.: s. Braun und Busch	33
BUSCH, G., Schmid, P. und Spöndlin, R. (ETH. Zürich): Thermospannungen des Siliziumkarbids gegen Kupfer und Platin	461
DÄLLENBACH, Walter: Einfluss der Startphase der Teilchen bei Beschleunigern	267

DICK, L., Falk-Vairant, P. et Rossel, J. (E.P.F. Zurich): Travail d'ionisation, effets de recombinaison et pouvoir d'arrêt de quelques gaz pour les particules	234
DICK, L., Falk-Vairant, P. et Rossel, J.: Travail d'ionisation, effets de recombinaison et pouvoir d'arrêt de quelques gaz pour les particules	357
DREYFUS-GRAF, J. (Genève): Les formules de l'effet Doppler dans la théorie ellipsoïdale de la relativité restreinte (erreur des formules d'Einstein) . .	469
EKKERS, G. J. und Farnar, A. (Zürich): Über Messungen der Thomson-Koeffizienten	250
FALK-VAIRANT, P.: s. Dick, Falk-Vairant et Rossel	234
FALK-VAIRANT, P.: s. Dick, Falk-Vairant et Rossel	357
FARNER, A.: s. Ekkers und Farnar	250
FRAUENFELDER, H., Gugelot, P. C., Huber, O., Medicus, H., Preiswerk, P., Scherrer, P. und Steffen, R. (ETH. Zürich): Das 7-Sekunden-Isomer des Au ¹⁹⁴	238
FURRER, W.: s. Stadlin, Furrer, Weber und König	468
GABRIEL, M.: s. Bleuler und Gabriel	67
GOLDSCHMIDT, R. (Lausanne): Nouveaux matériaux pour la technique des courants faibles	458
GREINACHER, H. (Bern): Über das Auflösungsvermögen von Mikroskop und Fernrohr	27
GREINACHER, H. (Bern): Vereinfachter Funkenzähler	222
GUGELOT, P. C.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen	153
GUGELOT, P. C.: s. Frauenfelder, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen	238
GUGELOT, P. C., Huber, O., Medicus, H., Preiswerk, P. und Steffen, R. (ETH. Zürich): Das 53-Minuten-Isotop des Elementes 43	240
HARDUNG, V. (Fribourg): Die Dipolmomente der Dinitrotoluole und die quantenmechanische Erklärung der Reaktionsfähigkeit ihrer Methylgruppen	459
HIRZEL, O., Stoll, P. und Wäffler, H. (ETH. Zürich): Untersuchung kurzlebiger metastabiler Kernanregungszustände mittels verzögerter Koinzidenzen	241
HIRZEL, O. und Wäffler, H.: Kernphotoeffekt unter Emission eines Protons .	373
HUBER, O.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen	153
HUBER, O.: s. Frauenfelder, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen	238
HUBER, O.: s. Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk und Steffen	240
HUBER, O., Medicus, H., Preiswerk, P. und Steffen, R.: Die radioaktive Umwandlung des Zn ⁶³	495
HUBER, P.: s. Alder, Baldinger, Huber und Metzger	73
HUBER, P.: s. Maeder, Huber und Stebler	230
HUBER, P.: s. Alder, Huber und Metzger	234
HUBER, P.: s. Metzger, Huber und Alder	236
HUBER, P.: s. Baldinger und Huber	238 und 470
HUBER, P., Hunzinger, W. und Baldinger, E.: Über eine neue Zählrohr-Entladung bei stark ionisierenden Strahlen.	525
HUNZINGER, W.: s. Huber, Hunzinger und Baldinger	525
INDUNI, G. (Trüb, Täuber & Co. AG., Zürich): Sur une source d'électrons pour microscopes électroniques	463

JACOBI, E.: Über die Adsorption von künstlich radioaktiven Cadmiumionen an Silberchlorid	166
JOST, RES: Bemerkungen zur mathematischen Theorie der Zähler	173
JOST, RES: Über die falschen Nullstellen der Eigenwerte der S -Matrix	256
JOST, RES (ETH. Zürich): Comptoneffekt und Emission kleiner Quanten	467
JOST, RES (ETH. Zürich): Eine Bemerkung über die Entropie in der Wellenmechanik.	491
JOYET, G. (C.A.C.R., Lausanne): Appareillage et méthode de mesure des préparations biologiques radioactives	247
KÄCH, A.: Die Ausbreitung der gedämpften $H_{0,m}$ -Welle in der Umgebung der Grenzfrequenz	341
KÖNIG, H.: s. Stadlin, Furrer, Weber und König	468
KÖNIG, H.: s. Maeder und König	468
KÖNIG, H. (Bern): Orientierung über die Tabellen für Buchstabensymbole und Zeichen des Schweiz. Elektrotechnischen Vereins	469
LOTMAR, W.: Zur Kristallitgrösse dünner Antimonschichten	441
MAEDER, D. (Zürich): Elektronenröhren-Spektrograph zur Messung von Ionisationskammerimpulsen.	139
MAEDER, D. (ETH. Zürich), Huber, P. und Stebler, A. (Basel): Zur photographischen Intensitätsbestimmung mit dem Impulsspektrographen	239
MAEDER, F. und König, H. (Bern, AMG.): Eine Methode zur Bestimmung von Reflexionszahlen mit Hilfe der Ulbricht'schen Kugel	468
MÄHLY, H. und Trösch, A. (ETH. Zürich): Scherungsschwingungen quadratischer Platten	253
MATTHIAS, B.: s. Blattner, Matthias und Merz	225
MATTHIAS, B.: s. Blattner, Matthias, Merz und Scherrer	245
MATTHIAS, B., Merz, W. und Scherrer, P.: Das seignettelektrische Gitter vom KH_2PO_4 -Typus und das Verhalten der NH_4 -Rotationsumwandlung bei $(NH_4Tl)H_2PO_4$ -Mischkristallen	273
MEDICUS, H.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen	153
MEDICUS, H.: s. Frauenfelder, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen	238
MEDICUS, H.: s. Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk und Steffen	240
MEDICUS, H.: s. Huber, Medicus, Preiswerk und Steffen	495
MELCHER, D.: Die Struktur des Ozon-Moleküls	183
MERZ, W.: s. Blattner, Matthias und Merz	225
MERZ, W.: s. Blattner, Matthias, Merz und Scherrer	245
MERZ, W.: s. Matthias, Merz und Scherrer	273
METZGER, F.: s. Alder, Baldinger, Huber und Metzger	73
METZGER, F.: s. Alder, Huber und Metzger	234
METZGER, F., Huber, P. und Alder, F. (Basel): Untersuchung der (n, α) -Reaktion an Chlor mit Hilfe einer heizbaren Ionisationskammer	236
MIESCHER, E.: s. Bacher und Miescher	245
PATRY, J. (Albiswerk Zürich AG.): Sur l'impédance de radiation d'un dipole électromagnétique	455
PREISWERK, P.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen	153
PREISWERK, P.: s. Frauenfelder, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen	238
PREISWERK, P.: s. Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk und Steffen	240

PREISWERK, P.: s. Huber, Medicus, Preiswerk und Steffen	495
ROSSEL, J.: Etudes des forces intermoléculaires par diffusion des neutrons lents. Application à N_2 , H_2O et KH_2PO_4	105
ROSSEL, J.: s. Dick, Falk-Vairant et Rossel	234
ROSSEL, J.: s. Dick, Falk-Vairant et Rossel	357
ROSSEL, J.: s. Bleuler et Rossel	445
ROSSEL, J.: s. Bleuler et Rossel	467
SCHERRER, P.: s. Bleuler, Scherrer, Walter und Zünti	96
SCHERRER, P.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen	153
SCHERRER, P.: s. Frauenfelder, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen	238
SCHERRER, P.: s. Blattner, Matthias, Merz und Scherrer	245
SCHERRER, P.: s. Matthias, Merz und Scherrer	273
SCHMID, P.: s. Busch, Schmid und Spöndlin	461
SPÖNDLIN, R.: s. Busch, Schmid und Spöndlin	461
STALDIN, R., Furrer, W., Weber, H. und König, H. (Bern, AVF. der PTT.): Über Einschaltvorgänge und Übertragungsmasse elektroakustischer Sy- steme	468
STEBLER, A.: s. Maeder, Huber und Stebler	230
STEFFEN, R.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen	153
STEFFEN, R.: s. Frauenfelder, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen	238
STEFFEN, R.: s. Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk und Steffen	240
STEFFEN, R.: s. Huber, Medicus, Preiswerk und Steffen	495
STOLL, P.: s. Hirzel, Stoll und Wäffler	241
TRÖSCH, A.: s. Mähly und Trösch	253
VILLARS, Felix (ETH. Zürich): Magnetische Momente der Kerne H_3 und He_3	467
VILLARS, Felix: The magnetic Exchange Moments for H_3 and He_3	476
VON GUGELBERG, H. L. (ETH. Zürich): Über Aufbau und Rückwirkung bei der Niederdruckentladung	250
VON GUGELBERG, Hans Luz: Über Aufbauzeit, Rückwirkungsmechanismus und Stabilität bei stromschwachen Niederdruckentladungen	307
WÄFFLER, H.: s. Hirzel, Stoll und Wäffler	241
WÄFFLER, H.: s. Hirzel und Wäffler	373
WALTER, M.: s. Bleuler, Scherrer, Walter und Zünti	96
WEBER, H.: s. Stadlin, Furrer, Weber und König	468
WEGMANN, Lienhard: Über eine Methode zur Messung sehr kleiner Änderungen elektrischer Kapazitäten und Phasenwinkel im Gebiete der Ton- und Niederfrequenz	405
WIRZ, Paul: Eigenschaften von ein- und mehrfachen zylindrischen akustischen Resonatoren	3
ZÜNTI, W.: s. Bleuler, Scherrer, Walter und Zünti	96
ZÜNTI, W.: s. Bleuler und Zünti	195

HELVETICA PHYSICA ACTA

VOLUMEN XX

INHALTSVERZEICHNIS — TABLE DES MATIÈRES

<i>Fasciculus I</i>	Seite
(15. II. 1947)	
PAUL WIRZ: Eigenschaften von ein- und mehrfachen zylindrischen akustischen Resonatoren	3
H. GREINACHER (Bern): Über das Auflösungsvermögen von Mikroskop und Fernrohr	27
A. BRAUN und G. BUSCH: Versuche zur Messung der thermischen Elektronenemission von Graphit, Silizium und Siliziumkarbid	33
E. BLEULER und M. GABRIEL: Dualer Zerfall des Kalium 40	67
F. ALDER, E. BALDINGER, P. HUBER und F. METZGER (Basel): Über die Ausbildung der Entladung in Zählrohren mit Alkoholdampfzusatz	73
E. BLEULER, P. SCHERRER, M. WALTER und W. ZÜNTI: β -Zerfall von N^{16}	96

<i>Fasciculus II</i>	
(30. IV. 1947)	
J. ROSSEL: Etude des forces intermoléculaires par diffusion des neutrons lents. Application à N_2 , H_2O et KH_2PO_4	105
A. BORSELLINO: Über die Materialisierung der γ -Strahlen im Felde eines Elektrons	136
D. MAEDER (Zürich): Elektronenröhren-Spektrograph zur Messung von Ionisationskammerimpulsen	139
H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER und R. STEFFEN: Die metastabilen Zustände der Silberkerne Ag^{107} und Ag^{109}	153
E. JACOBI: Über die Adsorption von künstlich radioaktiven Cadmiumionen an Silberchlorid	166
RES JOST: Bemerkungen zur mathematischen Theorie der Zähler	173
D. MELCHER: Die Struktur des Ozon-Moleküls	183
E. BLEULER und W. ZÜNTI: Die Zerfallsenergien von O^{19} , Na^{25} , Mg^{27} , Al^{28} und K^{42}	195
F. BORGNIS: Zur Theorie der Elektronen-Plasmaschwingungen	207
H. GREINACHER (Bern): Vereinfachter Funkenzähler	222
H. BLATTNER, B. MATTHIAS und W. MERZ: Einkristalle von Barium-Titanverbindungen	225

Fasciculus III

(4. VIII. 1947)

Bericht über die Tagung der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft . .	229
D. MAEDER (ETH. Zürich), P. HUBER und A. STEBLER (Basel): Zur photographischen Intensitätsbestimmung mit dem Impulsspektrographen	230
L. DICK, P. FALK-VAIRANT et J. ROSSEL (E.P.F. Zurich): Travail d'ionisation effets de recombinaison et pouvoir d'arrêt de quelques gaz pour les particules α	234
F. ALDER, P. HUBER und F. METZGER (Basel): Die Bestimmung der Ionisierungsarbeit an Stickstoff und Luft mit Po- α -Teilchen	234
F. METZGER, P. HUBER und F. ALDER (Basel): Untersuchung der (n, α)-Reaktion an Chlor mit Hilfe einer heizbaren Ionisationskammer . . .	236
E. BALDINGER und P. HUBER (Basel): Über das Auflösungsvermögen selbstlöschender Zählrohre bei hohen Stosszahlen	238
H. FRAUENFELDER, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER und R. STEFFEN (ETH. Zürich): Das 7-Sekunden-Isomer des Au ¹⁹⁷	238
P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK und R. STEFFEN (ETH. Zürich): Das 53-Minuten-Isotop des Elements 43	240
O. HIRZEL, P. STOLL und H. WÄFFLER (ETH. Zürich): Untersuchung kurzlebiger metastabiler Kernanregungszustände mittels verzögerter Koinzidenzen	241
H. BLATTNER, B. MATTHIAS, W. MERZ und P. SCHERRER (ETH. Zürich): Di-elektrische Anomalien an Barium-Titanat-Einkristallen	245
J. BACHER und E. MIESCHER (Basel): Komplexspektren der Manganhalogenide	245
G. JOYET (C.A.C.R., Lausanne): Appareillage et méthode de mesure des préparations biologiques radioactives	247
H. L. VON GUGELBERG (ETH. Zürich): Über Aufbau und Rückwirkung bei der Niederdruckentladung	250
G. J. EKKERS und A. FARNER (Zürich): Über Messungen des Thomson-Koeffizienten	250
CL. ATTINGER (Neuchâtel): Influence du fluide entraîné sur la période d'un pendule de torsion	253
H. MÄHLY und A. TRÖSCH (ETH. Zürich): Scherungsschwingungen quadratischer Platten	253
RES JOST: Über die falschen Nullstellen der Eigenwerte der S -Matrix . . .	256
WALTER DÄLLENBACH: Einfluss der Startphase der Teilchen bei Beschleunigern	267
B. MATTHIAS, W. MERZ und P. SCHERRER: Das seigneteelektrische Gitter vom KH_2PO_4 -Typus und das Verhalten der NH_4 -Rotationsumwandlung bei $(\text{NH}_4, \text{Ti})\text{H}_2\text{PO}_4$ -Mischkristallen	273
HANS LUZ VON GUGELBERG: Über Aufbauzeit, Rückwirkungsmechanismus und Stabilität bei stromschwachen Niederdruckentladungen	307
A. KÄCH: Die Ausbreitung der gedämpften $H_{0,m}$ -Welle in der Umgebung der Grenzfrequenz	341
L. DICK, P. FALK-VAIRANT et J. ROSSEL: Travail d'ionisation, effets de recombinaison et pouvoir d'arrêt de quelques gaz pour les particules α . .	357

Fasciculus IV/V

(25. X. 1942)

O. HIRZEL und H. WÄFFLER: Kernphotoeffekt unter Emission eines Protons	373
LIENHARD WEGMANN: Über eine Methode zur Messung sehr kleiner Änderungen elektrischer Kapazitäten und Phasenwinkel im Gebiete der Ton- und Niederfrequenz	405
W. LOTMAR: Zur Kristallitgrösse dünner Antimonschichten	441
E. BLEULER et J. ROSSEL: Etude de la réaction $F^{19}(n, \alpha) N^{16}$	445

Fasciculus VI

(31. XII. 1947)

Bericht über die Tagung der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft . .	455
J. PATRY (Zürich): Sur l'impédance de radiation d'un dipole électromagnétique	455
R. GOLDSCHMIDT (Lausanne): Nouveaux matériaux pour la technique des courants faibles	458
V. HARDUNG (Fribourg): Die Dipolmomente der Dinitrotoluole und die quantenmechanische Erklärung der Reaktionsfähigkeit ihrer Methylgruppen	459
G. BUSCH, P. SCHMID und R. SPÖNDLIN (ETH. Zürich): Thermospannungen des Siliciumcarbids gegen Kupfer und Platin	461
G. INDUNI (Zürich): Sur une source d'électrons pour microscopes électroniques	463
E. BLEULER et J. ROSSEL: Etude de la réaction $F^{19}(n, \alpha) N^{16}$	467
RES JOST (ETH. Zürich): Comptoneffekt und Emission kleiner Quanten	467
FELIX VILLARS (ETH. Zürich): Magnetische Momente der Kerne H_3 und He_3	467
R. STADLIN, W. FURRER, H. WEBER und H. KÖNIG (Bern): Über Einschaltvorgänge und Übertragungsmasse elektroakustischer Systeme	468
F. MÄDER und H. KÖNIG (Bern): Eine Methode zur Bestimmung von Reflexionszahlen mit Hilfe der Ulbricht'schen Kugel	468
H. KÖNIG (Bern): Orientierung über die Tabellen für Buchstabensymbole und Zeichen des Schweiz. Elektrotechnischen Vereins	469
J. DREYFUS-GRAF (Genève): Les formules de l'effet Doppler dans la théorie ellipsoïdale de la relativité restreinte (erreur des formules d'Einstein)	469
E. BALDINGER und P. HUBER (Basel): Über das Auflösungsvermögen selbstlöschender Zählrohre bei hohen Stosszahlen	470
FELIX VILLARS: The Magnetic Exchange Moments for H_3 and He_3	476
RES JOST (ETH. Zürich): Eine Bemerkung über die Entropie in der Wellenmechanik.	491
O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK und R. STEFFEN: Die radioaktive Umwandlung des Zn^{63}	495
E. BLEULER: Resonanzen beim Prozess $S^{32}(n, p) P^{32}$	519
P. HUBER, W. HUNZINGER und E. BALDINGER: Über eine neue Zählrohr-Entladung bei stark ionisierenden Strahlen.	525
AUTORENREGISTER.	528
INHALTSVERZEICHNIS.	532